N° d'ordre :

THÈSE

présentée

A L'UNIVERSITÉ SCIENTIFIQUE ET MÉDICALE DE GRENOBLE

pour obtenir

LE TITRE DE DOCTEUR DE 3e CYCLE EN CHIMIE NUCLÉAIRE

PAR

Christiane CHAUVIN

SUJET

Mesure de quelques rendements dans la fission du Thorium 232 par des neutrons de 14 MeV et par des neutrons de réacteur.

Soutenue le 27 Septembre 1973, devant la Commission d'Examen

JURY

MM. J. P. LONGEQUEUE — *Président*

A. MOUSSA, J. BLACHOT — *Examinateurs*

N° d'ordre :

THÈSE

présentée

A L'UNIVERSITÉ SCIENTIFIQUE ET MÉDICALE DE GRENOBLE

pour obtenir

LE TITRE DE DOCTEUR DE 3e CYCLE EN CHIMIE NUCLÉAIRE

PAR

Christiane CHAUVIN

SUJET

Mesure de quelques rendements dans la fission du Thorium 232 par des neutrons de 14 MeV et par des neutrons de réacteur.

Soutenue le 27 Septembre 1973, devant la Commission d'Examen

JURY

MM. J. P. LONGEQUEUE — *Président*

A. MOUSSA, J. BLACHOT — *Examinateurs*

Digitized by the Internet Archive
in 2026

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

https://archive.org/details/IA41534927_0049

UNIVERSITE SCIENTIFIQUE
ET MEDICALE DE GRENOBLE

LISTE DES PROFESSEURS

Président : Monsieur Michel SOUTIF
Vice-Président : Monsieur Gabriel CAU

PROFESSEURS TITULAIRES

MM.	ANGLES D'AURIAC Paul	Mécanique des fluides
	ARNAUD Georges	Clinique des maladies infectieuses
	ARNAUD Paul	Chimie
	AUBERT Guy	Physique
	AYANT Yves	Physique approfondie
Mme	BARBIER Marie-Jeanne	Electrochimie
MM.	BARBIER Jean-Claude	Physique expérimentale
	BARBIER Reynold	Géologie appliquée
	BARJON Robert	Physique nucléaire
	BARNOUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
	BARRA Jean-René	Statistiques
	BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale
	BENOIT Jean	Radioélectricité
	BERNARD Alain	Mathématiques Pures
	BESSON Jean	Electrochimie
	BEZES Henri	Chirurgie générale
	BLAMBERT Maurice	Mathématiques Pures
	BOLLIET Louis	Informatique (IUT B)
	BONNET Georges	Electrotechnique
	BONNET Jean-Louis	Clinique ophtalmologique
	BONNET-EYMARD Joseph	Pathologie médicale
	BONNIER Etienne	Electrochimie Electrométallurgie
	BOUCHERLE André	Chimie et Toxicologie
	BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire
	BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques Appliquées
	BRAVARD Yves	Géographie
	BRISSONNEAU Pierre	Physique du Solide
	BUYLE-BODIN Maurice	Electronique
	CABANAC Jean	Pathologie chirurgicale
	CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et hydrologie
	CALAS François	Anatomie
	CARRAZ Gilbert	Biologie animale et pharmacodynamie
	CAU Gabriel	Médecine légale et Toxicologie
	CAUQUIS Georges	Chimie organique
	CHABAUTY Claude	Mathématiques Pures
	CHARACHON Robert	Oto-Rhino-Laryngologie
	CHATEAU Robert	Thérapeutique
	CHENE Marcel	Chimie papetière
	COEUR André	Pharmacie chimique
	CONTAMIN Robert	Clinique gynécologique
	COUDERC Pierre	Anatomie Pathologique
	CRAYA Antoine	Mécanique
Mme	DEBELMAS Anne-Marie	Matière médicale
MM.	DEBELMAS Jacques	Géologie générale
	DEGRANGE Charles	Zoologie
	DESRE Pierre	Métallurgie
	DESSAUX Georges	Physiologie animale
	DODU Jacques	Mécanique appliquée
	DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	DUCROS Pierre	Cristallographie
	DUGOIS Pierre	Clinique de Dermatologie et Syphiligraphie
	FAU René	Clinique neuro-psychiatrique
	FELICI Noël	Electrostatique

MM.	GAGNAIRE Didier	Chimie physique
	GALLISSOT François	Mathématiques Pures
	GALVANI Octave	Mathématiques Pures
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GEINDRE Michel	Electroradiologie
	GERBER Robert	Mathématiques Pures
	GIRAUD Pierre	Géologie
	KLEIN Joseph	Mathématiques Pures
Mme	KOFLER Lucie	Botanique et Physiologie végétale
MM.	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques Pures
	KRAVTCHENKO Julien	Mécanique
	KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	LACHARME Jean	Biologie végétale
	LAJZEROWICZ Joseph	Physique
	LATREILLE René	Chirurgie générale
	LATURAZE Jean	Biochimie pharmaceutique
	LAURENT Pierre	Mathématiques Appliquées
	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	LOUP Jean	Géographie
Mle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques Pures
	MALGRANGE Bernard	Mathématiques Pures
	MALINAS Yves	Clinique obstétricale
	MARTIN-NOEL Pierre	Sémélologie médicale
	MASSEPORT Jean	Géographie
	MAZARE Yves	Clinique médicale A
	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	MOURIQUAND Claude	Histologie
	MOUSSA André	Chimie nucléaire
	NEEL Louis	Physique du Solide
	OZENDA Paul	Botanique
	PAUTHENET René	Electrotechnique
	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques Pures
	PEBAY-PEYROULA Jean-Claude	Physique
	PERRET René	Servomécanismes
	PILLET Emile	Physique Industrielle
	RASSAT André	Chimie systématique
	RENARD Michel	Thermodynamique
	REULOS René	Physique Industrielle
	RINALDI Renaud	Physique
	ROGET Jean	Clinique de pédiatrie et de puériculture
	SANTON Lucien	Mécanique
	SEIGNEURIN Raymond	Microbiologie et Hygiène
	SENGEL Philippe	Zoologie
	SILBERT Robert	Mécanique des fluides
	SOUTIF Michel	Physique générale
	TANCHE Maurice	Physiologie
	TRAYNARD Philippe	Chimie générale
	VAILLAND François	Zoologie
	VALENTIN Jacques	Physique Nucléaire
	VAUQUOIS Bernard	Calcul électronique
Mme	VERAIN Alice	Pharmacie galénique
M.	VERAIN André	Physique
Mme	VEYRET Germaine	Géographie
MM.	VEYRET Paul	Géographie
	VIGNAIS Pierre	Biochimie médicale
	YOCCOZ Jean	Physique nucléaire théorique

PROFESSEURS ASSOCIES

MM.	BULLEMER Bernhard	Physique
	HANO JUN-ICHI	Mathématiques Pures
	STEPHENS Michaël	Mathématiques Appliquées

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM.	BEAUDOING André	Pédiatrie
Mme	BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques Pures
MM.	BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques appliquées
	BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique
	BONNETAIN Lucien	Chimie minérale
Mme	BONNIER Jane	Chimie générale
MM.	CARLIER Georges	Biologie végétale
	COHEN Joseph	Electrotechnique
	COUMES André	Radioélectricité
	DEPASSEL Roger	Mécanique des Fluides
	DEPORTES Charles	Chimie minérale
	GAUTHIER Yves	Sciences biologiques
	GAVEND Michel	Pharmacologie
	GERMAIN Jean Pierre	Mécanique
	GIDON Paul	Géologie et Minéralogie
	GLENAT René	Chimie organique
	HACQUES Gérard	Calcul numérique
	JANIN Bernard	Géographie
Mme	KAHANE Josette	Physique
MM.	MULLER Jean-Michel	Thérapeutique
	PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et minéralogie
	POULOUJADOFF Michel	Electrotechnique
	REBECQ Jacques	Biologie (CUS)
	REVOL Michel	Urologie
	REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
	ROBERT André	Chimie papetière
	DE ROUGEMONT Jacques	Neurochirurgie
	SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
	SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
	SIBILLE Robert	Construction Mécanique
	SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme	SOUTIF Jeanne	Physique générale

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

Mle	AGNIUS-DELORD Claudine	Physique pharmaceutique
	ALARY Josette	Chimie analytique
MM.	AMBLARD Pierre	Dermatologie
	AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
	ARMAND Yves	Chimie
	BEGUIN Claude	Chimie organique
	BELORIZKY Elie	Physique
	BENZAKEN Claude	Mathématiques Appliquées
	BILLET Jean	Géographie
	BLIMAN Samuel	Electronique (EIE)
	BLOCH Daniel	Electrotechnique
Mme	BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
MM.	BOUCHET Yves	Anatomie
	BOUVARD Maurice	Mécanique des Fluides

MM.	BRODEAU François	Mathématiques (IUT B)
	BRUGEL Lucien	Energétique
	BUISSON Roger	Physique
	BUTEL Jean	Orthopédie
	CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
	CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse
	CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EFP)
	CHIBON Pierre	Biologie animale
	COHEN-ADDAD Jean-Pierre	Spectrométrie physique
	COLOMB Maurice	Biochimie médicale
	CONTE René	Physique
	COULOMB Max	Radiologie
	CROUZET Guy	Radiologie
	DURAND Francis	Métallurgie
	DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme	ETERRADOSSI Jacqueline	Physiologie
MM.	FAURE Jacques	Médecine légale
	GENSAC Pierre	Botanique
	GIDON Maurice	Géologie
	GRIFFITHS Michaël	Mathématiques Appliquées
	GROULADE Joseph	Biochimie médicale
	HOLLARD Daniel	Hématologie.
	HUGONOT Robert	Hygiène et Médecine préventive
	IDELMAN Simon	Physiologie animale
	IVANES Marcel	Electricité
	JALBERT Pierre	Histologie
	JOLY Jean-René	Mathématiques Pures
	JOUBERT Jean-Claude	Physique du Solide
	JULLIEN Pierre	Mathématiques Pures
	KAHANE André	Physique générale
	KUHN Gérard	Physique
	LACOUME Jean-Louis	Physique
Mme	LAJZEROWICZ Jeanine	Physique
MM.	LANCIA Roland	Physique atomique
	LE JUNTER Noël	Electronique
	LEROY Philippe	Mathématiques
	LOISEAUX Jean-Marie	Physique Nucléaire
	LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique Nucléaire
	LUU DUC Cuong	Chimie Organique
	MACHE Régis	Physiologie végétale
	MAGNIN Robert	Hygiène et Médecine préventive
	MARECHAL Jean	Mécanique
	MARTIN-BOUYER Michel	Chimie (CUS)
	MAYNARD Roger	Physique du Solide
	MICHOULIER Jean	Physique (I.U.T. "A")
	MICOUD Max	Maladies infectieuses
	MOREAU René	Hydraulique (INP)
	NEGRE Robert	Mécanique
	PARAMELLE Bernard	Pneumologie
	PECCOUD François	Analyse (IUT B)
	PEFFEN René	Métallurgie
	PELMONT Jean	Physiologie animale
	PERRET Jean	Neurologie
	PERRIN Louis	Pathologie expérimentale
	PFISTER Jean-Claude	Physique du Solide
	PHELIP Xavier	Rhumatologie
Mlle	PIERY Yvette	Biologie animale

MM.	RACHAIL Michel	Médecine Interne
	RACINET Claude	Gynécologie et obstétrique
	RENAUD Maurice	Chimie
	RICHARD Lucien	Botanique
Mme	RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire
MM.	ROMIER Guy	Mathématiques (IUT B)
	SHOM Jean Claude	Chimie Générale
	STIEGLITZ Paul	Anesthésiologie
	STOEBNER Pierre	Anatomie pathologique
	VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques Appliquées
	VEILLON Gérard	Mathématiques Appliquées (INP)
	VIALON Pierre	Géologie
	VOOG Robert	Médecine Interne
	VROUSSOS Constantin	Radiologie
	ZADWORNY François	Electronique

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

MM.	BOUDOURIS Georges	Radioélectricité
	CHEEKE John	Thermodynamique
	GOLDSCHMIDT Hubert	Mathématiques
	SIDNEY STUARD	Mathématiques Pures
	YACOUD Mahmoud	Médecine légale

CHARGES DE FONCTIONS DE MAITRES DE CONFERENCES

Mme	BERIEL Hélène	Physiologie
Mme	RENAUDET Jacqueline	Microbiologie

Fait le 30 Mai 1972

AVANT - PROPOS

Ce travail a été effectué au CENTRE D'ETUDES NUCLEAIRES DE GRENOBLE.

Je remercie Monsieur le Professeur MOUSSA de m'avoir accueillie dans son laboratoire et de l'intérêt qu'il a prêté à cette étude.

Je remercie Monsieur BLACHOT qui m'a guidée chaque jour, ainsi que tous mes camarades de laboratoire qui ont su m'aider et m'encourager.

Je suis reconnaissante à Monsieur le Professeur LONGEQUEUE qui a bien voulu accepter la présidence du jury.

Mes remerciements vont également à Monsieur JALLIFIER des Accélérateurs et à Messieurs MAS et BONIN du service des Piles.

P L A N

1er CHAPITRE : La distribution en masses 1

1. Le phénomène de fission 1
2. Sections efficaces 1
3. Définition des rendements 2
4. Présentation du travail 3

2ème CHAPITRE : La cible 5

1. A 14 MeV 5
   a) préparation 5
   b) conditions d'irradiation 5

2. Aux neutrons de réacteurs 6
   a) préparation 6
   b) conditions d'irradiation 7

3. Traitement 8
   a) Méthode générale 8
   b) Terres rares 8
   c) Cadmium 9
   d) Ruthénium 10
   e) Antimoines 11
   f) Kryptons, Xénons 12

3ème CHAPITRE : Mesure de l'activité 13

1. Chaîne de mesure 13
   a) Détecteur 13
   b) Electronique associée 14

2. Traitement de l'information 14
   a) Etapes principales 14
   b) Calcul de la surface des pics : Multi 8, SAMPO 15

c) Etalonnage en énergie 16
d) Etalonnage en efficacité 18

4ème CHAPITRE : Mesure des rendements 20

1. Principe de la méthode 20
2. Calcul 24

5ème CHAPITRE : Résultats à 14 MeV 27

1. Rappel des résultats antérieurs 27
2. Cas des différentes chaînes isobariques étudiées 27

6ème CHAPITRE : Résultats aux neutrons de réacteurs 29

1. Rappel des résultats antérieurs 29
2. Cas des différentes chaînes isobariques étudiées 29

CONCLUSION : 31

- Liste des figures 32
- Liste des tableaux 33
- Bibliographie 34

* *

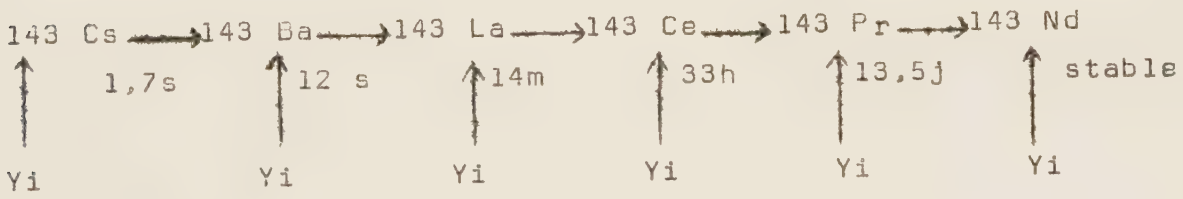
*

Le seuil à partir duquel la fission est possible pour le thorium 232 est aux environs de 0,6 MeV, sa section efficace étant de l'ordre de 100 mb pour En > 1,4 MeV.

La figure 1 résume la variation de cette section efficace en fonction de l'énergie des neutrons incidents.
Avec l'augmentation de l'énergie de ces neutrons, il peut y avoir possibilité d'émission d'un ou plusieurs neutrons de pré-fission qui laissent le noyau de thorium dans un état d'énergie tel que la fission peut encore se produire.
Les réactions th 232 (n, f), th 232 (n, n' f), th 232(n, n' n" f) sont appelés respectivement fission de première, deuxième ou troisième chance.

3- Définition des rendements :

On observe après le phénomène de fission, la formation d'une centaine de chaînes isobariques, chacune d'elles évoluant par radioactivité β^- vers l'élément le plus stable. Ces éléments ne sont pas produits en quantités égales. Ils se répartissent selon une courbe de distribution en masses avec, pour chacun d'eux un rendement différent.
Prenons le cas de la chaîne radioactive suivante :



Nous négligeons l'émission de neutrons retardés qui fait passer de la chaîne A à la chaîne A-1, et nous supposons le flux de neutrons assez faible pour pouvoir négliger la capture par les produits de fission qui fait passer de la chaîne A à la chaîne A + 1.

$_{90}Th^{232}$

1.41×10^{10} y

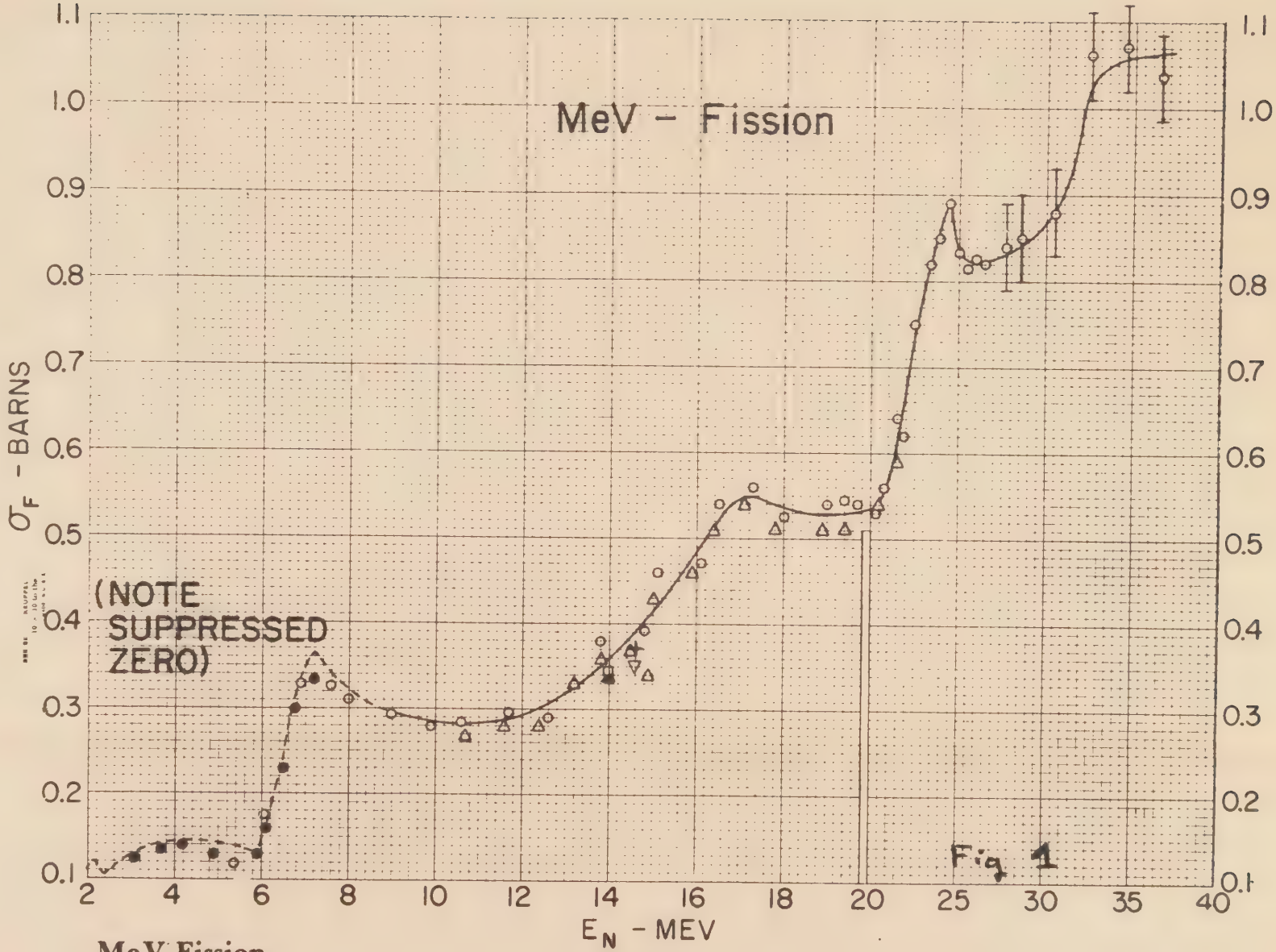


Fig. 1

MeV-Fission

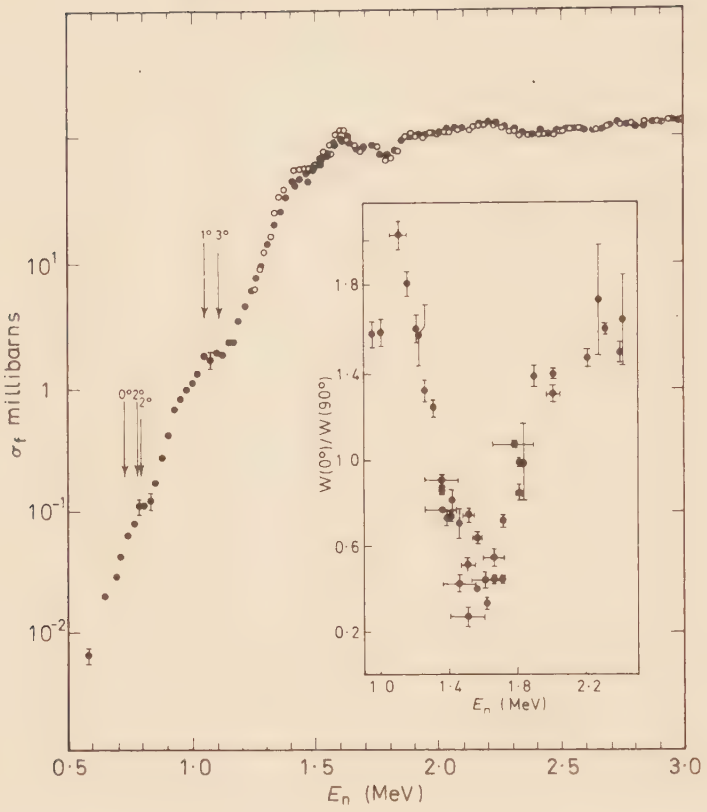


Figure 1.5 Fission cross-section of ^{232}Th for neutrons in the energy range 0.5–3.0 MeV. The inset shows changes in the angular distribution of the fission products over the corresponding energy range. σ_f millibarns; E_n MeV (From Kovacs *et al.*[26], by courtesy of IAEA)

Fig 1

Nous appelerons rendement cumulatif d'un produit de fission, la somme du rendement de ce produit de fission formé par décroissance beta de ses précurseurs, et du rendement direct ou rendement indépendant.
Dans ce cas précis le rendement cumulatif au niveau du cerium 143, est la somme des rendements indépendants des lanthane, baryum, cesium 143 .....
Le rendement total de chaîne est la somme des rendements indépendants de chaque isotope de la chaîne.

$$Y = \Sigma Yi$$

Il peut être utile de normaliser ce rendement total à un, et donc de parler de rendement fractionnel de chaîne pour l'isotope étudié.

La courbe traduisant la distribution en charges dans une même chaîne isobarique est, selon WAHL, assimilable à une gaussienne recouvrant quatre à cinq isotopes et dont le maximum correspond à Zp qui est, par définition, la charge la plus probable de la chaîne.

Dans le cas de notre exemple Zp est égal à 55,52. Nous pouvons voir, comme le montre la figure 2, que les éléments de bout de chaîne ont un rendement indépendant négligeable.

Pour des raisons pratiques nous sommes souvent amenés à mesurer le rendement cumulatif au niveau de l'avant dernier élément de la chaîne, nous négligeons en général la correction correspondante que l'on pourrait estimer empiriquement.

4- Présentation du travail :

Le phénomène de fission a fait l'objet de nombreuses études depuis sa découverte.

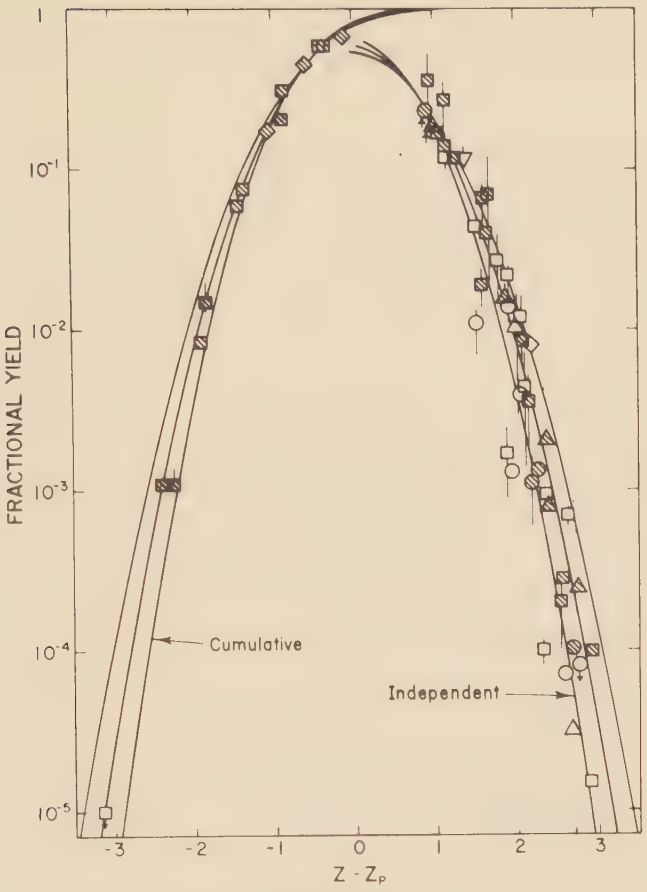


FIG. **1.50.** Conventional charge distribution plot as constructed by WAHL ET AL. The central curve conforms nearly to the Gaussian expression

$$P(Z) = \frac{1}{\sqrt{c\pi}} \exp\left[-\frac{(Z - Z_p)^2}{c}\right] \quad \text{where } c = 0.94.$$

This Gaussian was determined by the fractional yield data for decay chains with $A = 91$, 139, 140, 141, 142, and 143, in which yield values are available for two or more members. Additional experimental data are plotted at Z_p values determined by an empirical Z_p curve nearly identical to that shown in Fig. 1.49. Data from thermal fission of U^{233}, U^{235}, and Pu^{239} are shown as squares, circles, and triangles, respectively. Data from spontaneous fission of Cm^{242} and Cf^{252} are shown as inverted triangles and diamonds. Those points on the left hand branch are cumulative yields while those on the right are independent. This curve is normalized so that the sum of all points taken at unit intervals on the $Z - Z_p$ scale is unity.

Le "Manhattan project" réunit les premiers chercheurs. Depuis, diverses compilations, Meek-Rider (10), CROUCH (11), LAMMER (13) ont rassemblé la majorité des résultats publiés.
Malgré cela les rendements ne sont correctement connus que pour quelques noyaux fissiles et quelques énergies de particules incidentes.
Sur le thorium 232, peu étudié, nous ne possédons que des résultats très dispersés. L'objet de cette étude est d'apporter quelques renseignements complémentaires sur la fission de ce nuclide, et notamment sur l'existence possible de fission symétrique.
Quelques mesures de rendements ont été faites pour des neutrons de 14 MeV et des neutrons de réacteur (0,1 à 10 MeV).
Ces rendements sont calculés par une méthode mise au point au laboratoire de Chimie Nucléaire à Grenoble. Cette méthode est présentée dans le chapitre 4. Les techniques expérimentales liées à la cible de thorium irradiée sont décrites dans le chapitre II, tandis que le chapitre III résume les méthodes de mesures et de traitement de l'activité des sources. Les résultats obtenus sont rassemblés dans les deux derniers chapitres, et les conclusions tirées sur ce travail, à la fin de ce rapport.

2ème CHAPITRE

LA CIBLE

Nous avons utilisé du nitrate de thorium, Prolabo, directement sans purification supplémentaire. Nous avons examiné son spectre avant irradiation en comptant, pendant 2 heures, 500 mg de poudre.
La figure 3 montre que les pics les plus importants sont ceux des descendants du thorium 232 ; on retrouve tous les éléments de la famille radioactive.

1- Cas des irradiations à 14 MeV :

a) Préparation

Nous irradions le nitrate dans des sachets de plastique scellés de 3 x 3 cm, et dans des ampoules de quartz scellées pour les mesures en "non destructif", c'est-à-dire lorsqu'il ne doit pas y avoir de séparation chimique. Nous avons à chaque fois travaillé sur des quantités de 0,5 à 1 gramme de nitrate de thorium.

b) Conditions d'irradiation

Les neutrons de 14 MeV sont produits par la réaction T (d, n) He, au moyen d'un accélérateur SAMES du Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble.
L'échantillon de thorium est placé au fond du porte cible de façon à obtenir le flux de neutrons le plus intense possible.

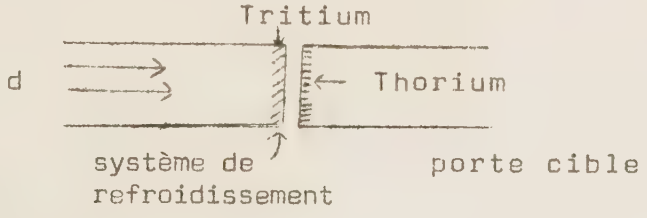
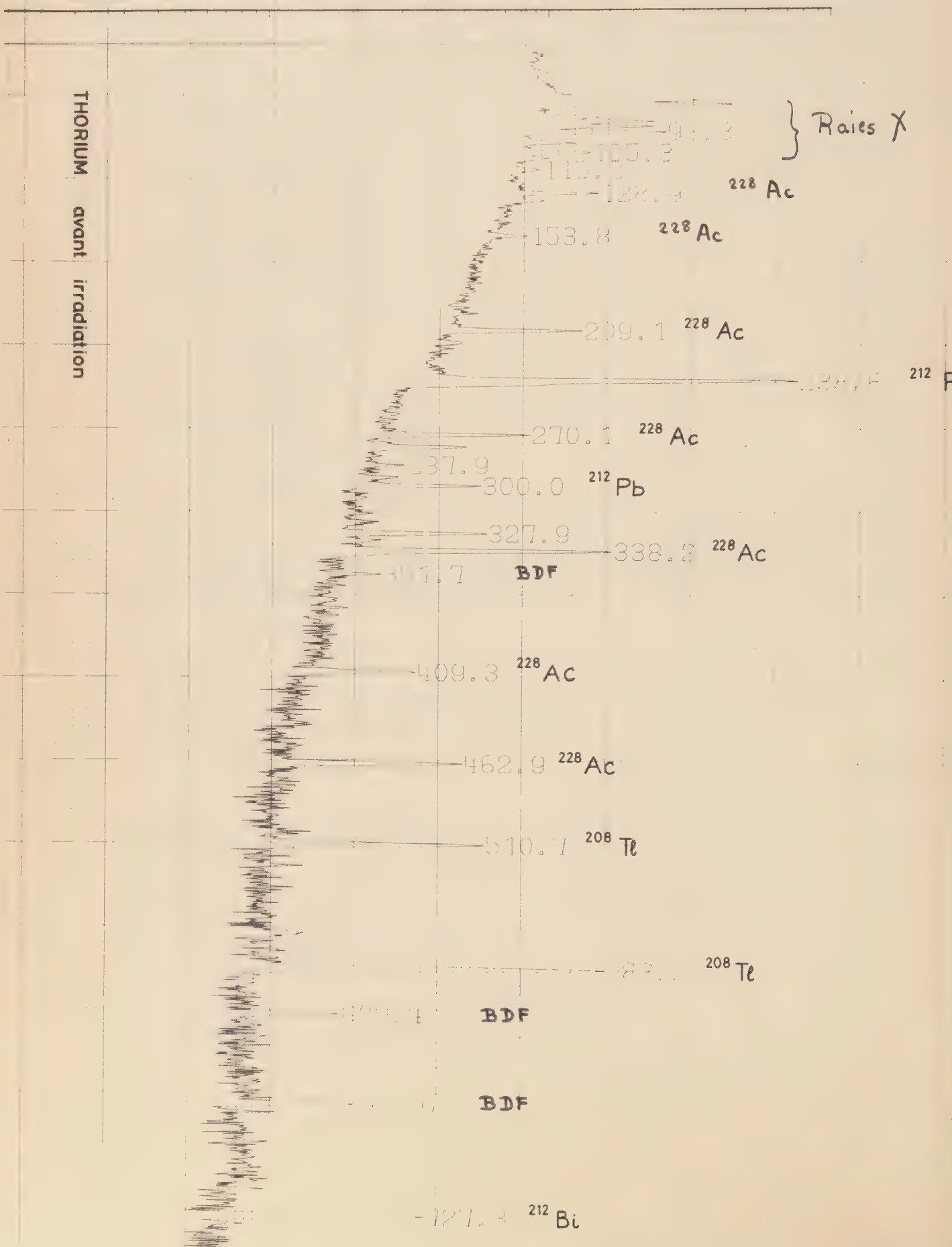


Fig 3


THORIUM avant irradiation
Raies X
228 Ac
153.8 228 Ac
209.1 228 Ac
212 P
270.1 228 Ac
300.0 212 Pb
327.9
338.8 228 Ac
BDF
409.3 228 Ac
462.9 228 Ac
510.7 208 Tl
208 Tl
BDF
BDF
212 Bi

Le flux obtenu est de l'ordre de 7.10^{10} n s^{-1} cm^{-2}.
Le tableau N° 1 représente la liste de quelques irradiations avec leurs caractéristiques respectives.

2- Cas des irradiations aux neutrons de réacteurs :

a) Préparation de la cible

Le nitrate est irradié en ampoules de quartz scellées de dimensions variables :

- Pour des analyses non destructives nous utilisons des ampoules de 5 mm de diamètre, contenant 2 à 3 mg de nitrate de thorium.

- Pour les séparations chimiques nous avons irradié des quantités de 200 mg et de 500 mg de nitrate en ampoules de 10 mm de diamètre.

DERNIERES IRRADIATIONS à 14 MeV

Date	Durée	Flux	Traitement
21.11.72	6 h		Sans séparation Iodes Ag - Cd
28.11.72	6 h	$3,5.10^{10}$ n s^{-} cm^{-2}	Sans séparation 1 Hcl 12 N
11.12.72	6 h	$4,5 . 10^{10}$	Sans séparation Iodes Cadmium Hcl 12 N
15.12.72	6 h	$4,5\ 10^{10}$	Sans séparation Cadmium
21.12.72	1 h	$6 - 10^{10}$	Hcl 12 N
	2 h	$6 - 10^{10}$	Cadmium Argent
4.01.73	5 h		Cadmium Sans séparation
10.1.73	4 h	$3,6\text{-}10^{10}$	Sans séparation Cadmium - Ruthenium - Antimoine
17.1.73	4 h		Sans séparation Cadmium Ruthenium
24.01.73	5 h	$4,8\text{-}10^{10}$	Sans séparation Cadmium Ruthenium Antimoine
12.02.73	5 h	$5 - 10^{10}$	Ruthenium Antimoine
14.02.73	5 h		Ruthenium Antimoine
21.02.73	5 h	$4 - 10^{10}$	Hcl 12 N Antimoine
9.03.73	5h18'	$3 - 10^{10}$	Mesure absolue
28.03.73	4h10'	$6 - 10^{10}$	Non destructif

/TABLEAU 1/

Le flux obtenu est de l'ordre de 7.10^{10} n s^{-1} cm^{-2}.
Le tableau N° 1 représente la liste de quelques irradiations avec leurs caractéristiques respectives.

2- Cas des irradiations aux neutrons de réacteurs :

a) Préparation de la cible

Le nitrate est irradié en ampoules de quartz scellées de dimensions variables :

- Pour des analyses non destructives nous utilisons des ampoules de 5 mm de diamètre, contenant 2 à 3 mg de nitrate de thorium.

- Pour les séparations chimiques nous avons irradié des quantités de 200 mg et de 500 mg de nitrate en ampoules de 10 mm de diamètre.

b) Conditions d'irradiations

L'irradiation a eu lieu dans le réacteur d'essais, de faible puissance, Siloette - Le dispositif utilisé est la maquette Héloise dont la mise au point a fait l'objet de la thèse de M. DESTOT (Thèse Universi. Grenoble Déc. 72).

Rappelons brièvement ses caractéristiques :

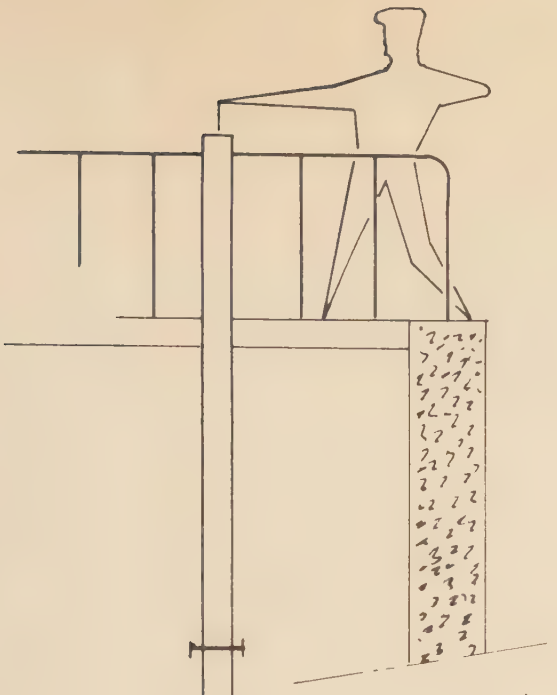
Le but recherché est l'obtention d'un flux de neutrons identique à celui émis lors de la fission de l'uranium = flux dit "frais" ou "non dégradé" et caractérisé par :

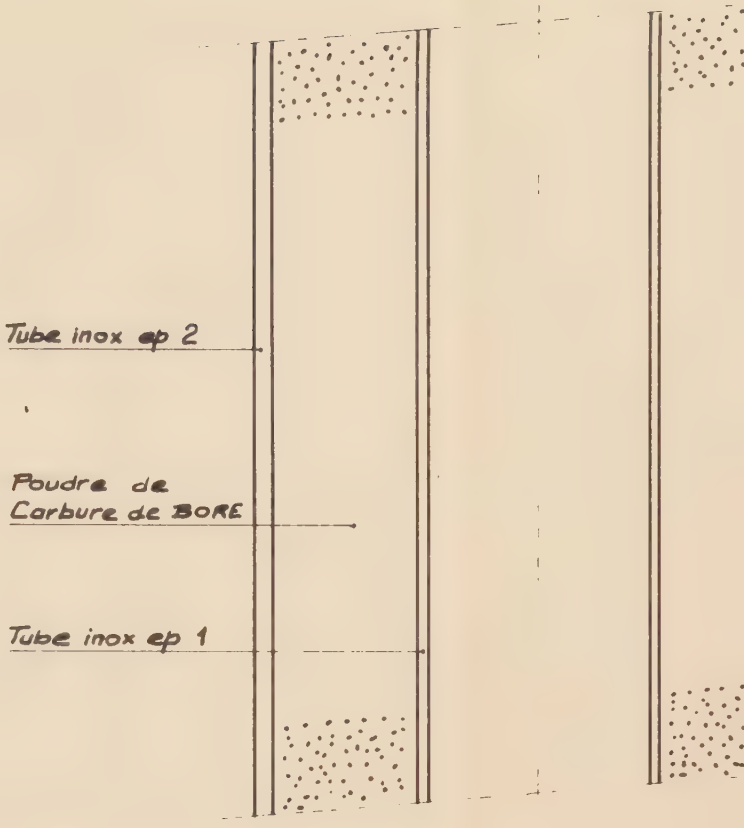
- l'absence de neutrons thermiques
- l'absence de neutrons épithermiques de basse énergie.
- la situation du maximum du spectre de neutrons rapides entre 100 keV et 1 MeV.

Ces objectifs ont été atteints en plaçant un filtre composé d'une épaisseur de 6 mm de poudre de Bore enrichi, sur une hauteur de 30 mm dans la partie active et sur le fond ; ceci afin de faire écran aux neutrons thermiques et épithermiques provenant de tout point du coeur.

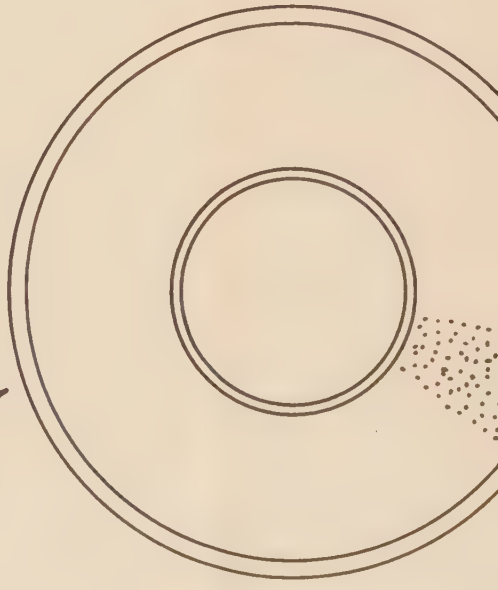
La partie supérieure est composée d'un tube d'inox de 115 cm, coiffé d'un chapeau d'aluminium, et gainé de poudre de carbure de Bore naturel. Le plan de la maquette est représenté dans la figure 4.
Le tableau N° 2 donne la liste des irradiations et leurs caractéristiques.
Le flux obtenu à l'intérieur d'Héloise a été de l'ordre de 7.10^{11} ns $^{-1}$ cm $^{-2}$.

— MAQUETTE HELOÏSE II





3 Tubes rallonge

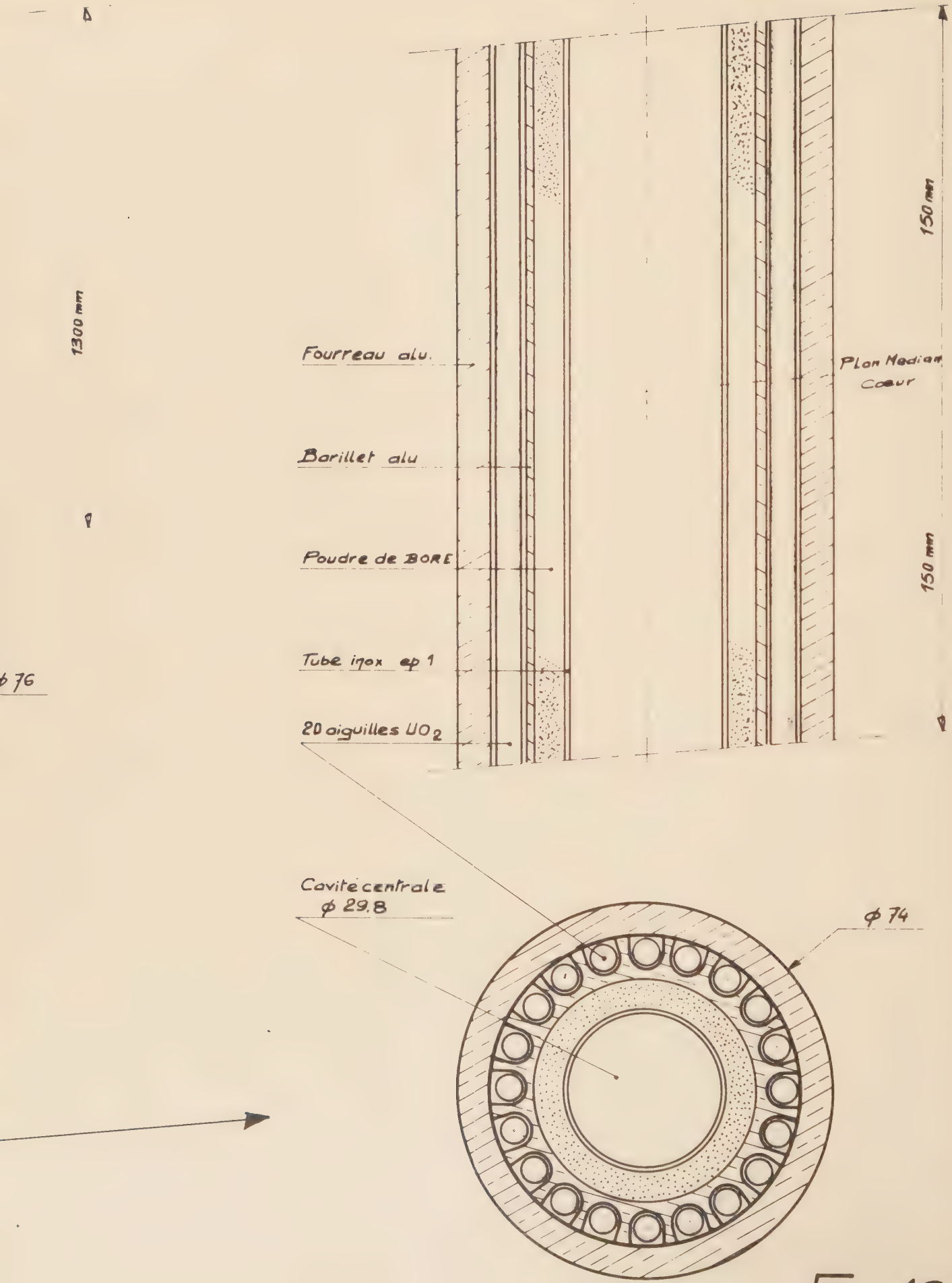


protection supérieure

Cœur SILOETTE

partie active

GÉOMÉTRIES PRINCIPALES —



IRRADIATIONS aux NEUTRONS de REACTEURS

DATE		Quantité irradiée	TRAITEMENT
5-4-73	TH2N°1	· 500 mg THORIUM nitrate	Hcl 12N Cadmium Sans Séparation
11-4-73	TH2N°2	.500 mg " " .200 mg " "	Cadmium Hcl 12N Sans séparation
25-4-73	TH2N°3	.500 mg " " .31 mg " "	Cadmium Hcl 12N Non destructif
3-5-73	TH2N°4	.500mg " " .21 mg " "	Cadmium Hcl 12N Antimoines Non Destructif
9-5-73	TH2N°5	· 411mg " " · 8 mg " "	Hcl 12N Antimoines Ruthénium Non destructif
14-5-73	TH2N°6	· 466 mg " " · 2 mg " "	Ruthénium Non destructif
17-5-73	TH2N°7	· 500 mg " " · 2 mg " "	Hcl 12N Non destructif
22-5-73	TH2N°8	· 200 mg " " · 2 mg " " · 500 mg " "	Cadmium Non destructif Ruthénium
24-5-73	TH2N°9	· 500mg " " · 200 mg " " · 3 mg " "	Cadmium Non destructif
29-5-73	TH2N°10	· 500mg " " · 200 mg " "	Ruthenium Cadmium

TIRR. = 4^H Flux = 7.10^{11} n s^{-1} cm^{-2}

Tableau 2

3- Traitement de la cible :

a) Méthode d'analyse

La cible irradiée est traitée différemment selon les résultats que l'on souhaite obtenir.
Pour les analyses "non destructives" nous mesurons directement l'activité du thorium irradié en comptant l'ampoule de quartz à différents temps de refroidissement.
Dans les autres cas d'analyse, la poudre est dissoute, puis répartie en différentes aliquotes qui vont servir aux diverses séparations chimiques.
Certaines ont même été comptées sans autre traitement que la dissolution.
Les séparations chimiques utilisées reposent toutes sur la propriété qu'ont certains éléments de se partager différemment entre deux milieux en présence. Cette différence d'affinité se mesure par le coefficient de partage qui est le rapport entre les concentrations de l'élément dans chacun des milieux.
Dans le cas de chromatographie sur colonne, l'un des milieux est une résine solide qui fixe préférentiellement selon sa nature, certains ions par formation de complexes. Plus grands sont les coefficients de partage, mieux retenus sont les ions.

b) Séparation des terres rares, alcalins, alcalino-terreux

Ces éléments sont formés en grande quantité lors de la fission, et leur étude est gênée par les interférences entre leurs rayonnements gamma et ceux des autres produits de fission. Nous les isolons des autres éléments par chromatographie sur colonne. Dans le cas d'une résine anionique équilibrée en Hcl 12 N, les coefficients de partage ne sont grands que pour les éléments qui forment des complexes avec les ions chlorures, ce qui n'est pas le cas pour les terres rares, les alcalins, les alcalino-terreux : il peut donc y avoir séparation.

Mode opératoire

La solution d'acide chlorhydrique 12 N contenant une fraction de l'échantillon irradié, est versée sur une colonne de 5 mm de diamètre contenant une résine Dowex 1 X 8 prééquilibrée en Hcl 12 N.

Les isotopes d'iode, de tellure, de zirconium, de ruthenium et de protactinium sont fixés sur la résine, tandis que passent les terres rares, les alcalins, les alcalino-terreux et le thorium non fissioné.

Nous avons là une séparation grossière des éléments pré-cités, qui nous permet cependant de mesurer les rendements cumulatifs des chaînes correspondant aux isotopes des divers éléments séparés.

c) Extraction des isotopes de cadmium

La figure 5 montre que pour une résine anionique en milieu chlorhydrique normal le coefficient de partage du cadmium est supérieur à 10^3 . Par contre sur une même résine en milieu sulfurique ce coefficient de partage est faible. Il peut donc y avoir fixation, puis élution du cadmium.
Le rendement de la séparation chimique est mesuré en ajoutant à la solution initiale une quantité connue d'entraîneur actif dont l'activité a été préalablement mesurée.

Mode opératoire

Le nitrate de thorium irradié est dissout en Hcl 1 N.
On ajoute 1 ml d'une solution contenant 109 Cd entraîneur, puis la solution obtenue est passée sur une résine anionique prééquilibrée en acide chlorhydrique normal.
Le cadmium est fixé ; la partie non retenue sur la résine servira de solution de référence pour le calcul du

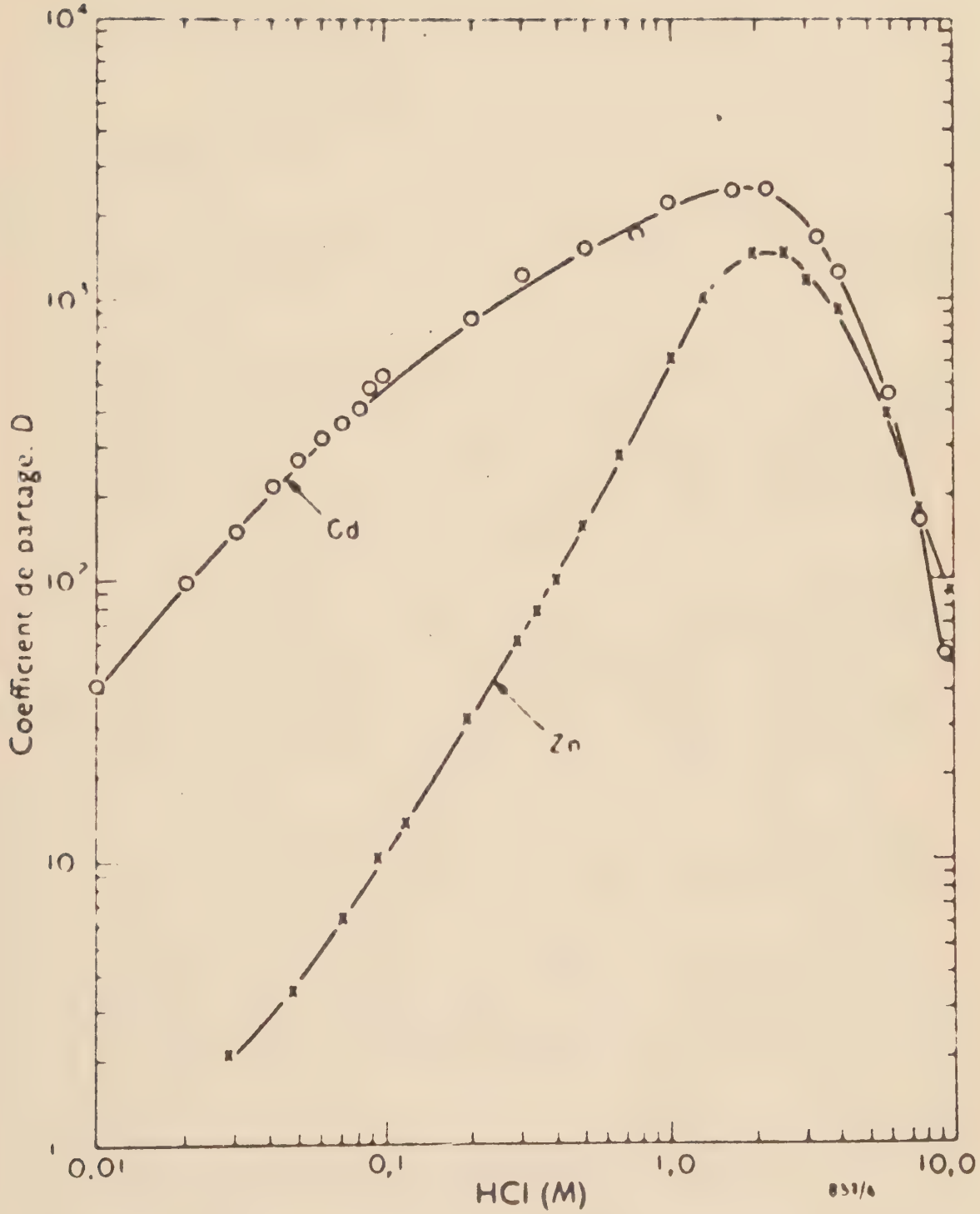


Figure 4. — Adsorption
pour l'échange d'anions du zinc(II) et du cadmium(II).

rendement du cadmium ; c'est en effet dans cette solution concentrée et mise en flacon de 4 cm3 qu'est mesuré le Ba 140 qui sera sera comparé aux isotopes de cadmium pour le calcul de leur rendement.

Le cadmium est ensuite élué par trois volumes d'acide sulfurique 1,8 N.

La solution obtenue est concentrée, et mise en petits flacons de 4 centimètres cubes.

Dans le cas d'irradiation sous un spectre de fission, la quantité de protactinium 233 formé par réaction (n, γ), est importante. Une faible partie "suit" le cadmium lors de la séparation chimique, il est donc nécessaire de faire une purification supplémentaire.

Pour cela nous portons la fraction $H_2 SO_4$ à sec, puis reprenons par de l'Hcl 12 N. La solution est alors passée sur une résine anionique Dowex 1 X 8 équilibrée en Hcl 12 N. Le cadmium n'est pas retenu tandis que le Pa reste fixé. L'éluat est concentré et mis en petits flacons de 4 cm^3.

Le rendement de la séparation est de l'ordre de 80% dans le cas d'une seule résine, et de 60% dans le cas de la purification supplémentaire.
La pureté obtenue est satisfaisante pour l'étude des raies gamma des cadmium 115 et 117, le principal contaminant étant l'étain (Sn (+ π) ayant le même comportement que le cadmium + II).

d) Extraction des isotopes de ruthenium

Par oxydation à l'état VIII, le ruthenium forme une molécule neutre = le tetroxyde de ruthenium $Ru O_4$, qui possède un faible point d'ébullition. Il a aussi la propriété de se dissoudre dans les solvants non polaires, d'où l'usage du

tétrachlorure de carbone qui va solubiliser sélectivement ces molécules. Cette méthode a l'avantage d'être rapide.

Mode opératoire

Le nitrate de thorium irradié est dissout dans un mélange nitrique fumant, acide perchlorique et acide orthophosphorique selon la méthode indiquée par J. Kleinberg (21).
On ajoute l'entraîneur : 10 mg de chlorure de ruthenium naturel, puis environ 50 mg de bismuthate de sodium qui achève l'oxydation du ruthenium.
On procède alors à l'extraction par du tétrachlorure de carbone. Le ruthenium est ensuite réduit à l'état d'oxydation III par de l'éthanol. Ce passage est marqué par l'apparition d'un couleur brune. La réextraction se fait par de l'acide chlorhydrique normal. La phase aqueuse est concentrée, puis mise en petits flacons de 4 cm^3.

Le rendement non mesuré de la séparation, est suffisant pour une étude relative de la distribution des masses 103 et 105. La pureté de la séparation est satisfaisante.

e) Extraction des isotopes d'antimoines

La figure 6 montre que l'antimoine à l'état d'oxydation V se dissout sélectivement dans l'acide diethyl phosphorique. Nous allons exploiter cette propriété pour séparer les isotopes d'antimoines des autres produits de fission.

Mode opératoire

Le nitrate de thorium irradié est dissout en acide chlorhydrique 12 N. On ajoute 1 mg de chlorure d'antimoine inactif et l'on oxyde les antimoines à l'état V par quelques milligrammes de chlorate de potassium. Puis l'on effectue deux

0/0 d'extraction

Extraction de l'Antimoine par HDEP à partir d'une solution d'HCl

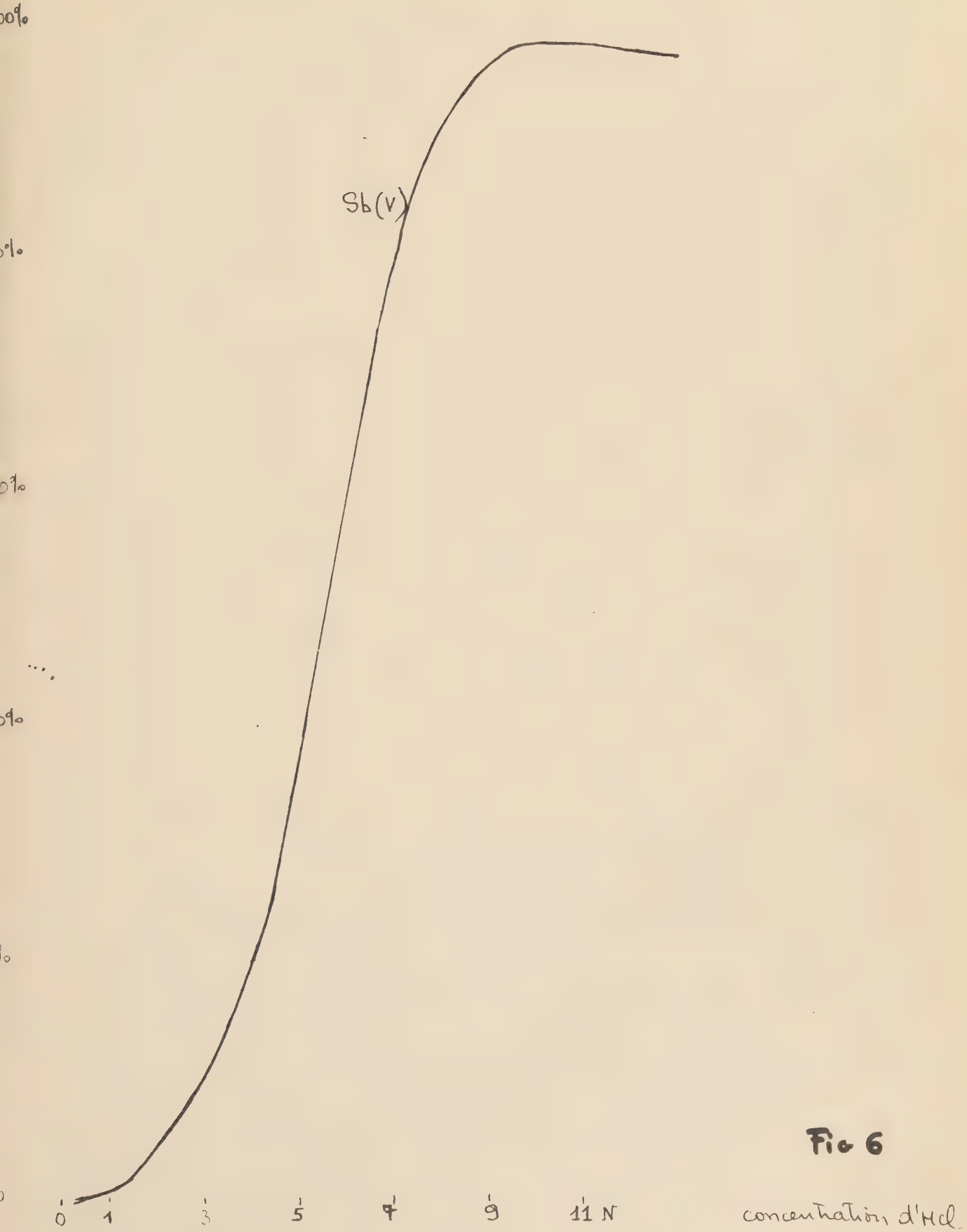


Fig 6

extractions par l'acide diethylphosphorique en solution dans l'hexane. La réextraction se fait par de l'acide chlorhydrique normal.
Il est nécessaire de faire une purification supplémentaire car il y a une forte contamination d'iodes.
Pour cela nous ajoutons à la solution précédente 0,5 cm3 de iodure de potassium qui va jouer le rôle d'entraîneur ; l'oxydation à l'état d'iodate se fait par l'hypochlorite, tandis que le chlorure d'hydroxylamine ramène l'iode à l'état zéro en vue de l'extraction au tétrachlorure de carbone.
La phase aqueuse contient les antimoines débarassés de l'iode.
Le rendement de la séparation a été mesuré en ajoutant à la solution initiale de l'antimoine 125 préalablement compté.
Il est assez faible (10%) mais comme nous voulions seulement une valeur relative des divers antimoines, nous ne l'avons pas déterminé systématiquement.
En ce qui concerne l'irradiation aux neutrons de réacteur, il n'a pas été possible d'obtenir de résultats satisfaisants, le faible rendement de fission de Sb 127, et aussi le faible rendement de la séparation n'ont pas permis une mesure suffisante de l'activité du gamma du 473 keV de l'antimoine 127.

f) Extraction du Krypton et du Xenon

Nous avons utilisé la même chambre de fission que Bocquet et al (16). Au lieu d'être connectée au séparateur d'isotopes, elle est liée à une pompe à vide. Les gaz de fission Krypton et Xénon passent sur un piège à charbon actif maintenu à la température de l'azote liquide.
Le pompage sur la chambre n'est effectué que 1 h 30 après la fin de l'irradiation.
On obtient ainsi uniquement les 85 Kr, 87 Kr, 88 Kr, 135 Xe avec une légère contamination par l'iode 1%.
L'isotope de référence pour le calcul du rendement est le 87 Kr.

3ème Chapitre

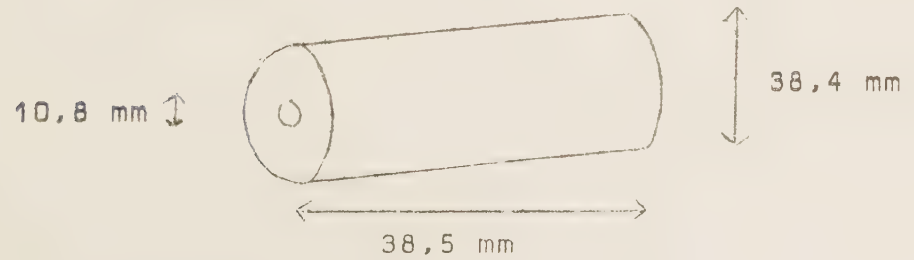
MESURE DE L'ACTIVITE

Les mesures d'activité des éléments étudiés sont faites par spectrométrie gamma : les photons gamma émis par les produits de fission interagissent avec les atomes du cristal détecteur, par création d'électrons issus d'effet photoélectrique, Compton ou "création de paire". Ces électrons dont le parcours dans le cristal est très faible, et qui ont donc peu de probabilité d'en sortir, produisent à leur tour des paires électron-trou qui sont collectées, et se traduisent par des impulsions électriques dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie des photons incidents.
Les impulsions sont "rangées" dans un analyseur multi-canaux pour subir, par la suite, différents traitements.

1 - Chaîne de mesure :

La chaîne de spectrométrie gamma utilisée pour cette étude comprend :

a) Un détecteur à jonction Ge-Li, constitué d'un cristal de Ge, type p, dopé au Li, type n, maintenu à la température de l'azote liquide en raison de la forte conductivité du germanium à température ordinaire.
La jonction est coaxiale de marque Quartz & Silice



ses caractéristiques sont les suivantes :

- son volume est de 43,5 cm3
- sa résolution sur le pic de 1332 keV du Co^{60} est de 2,35 keV
- l'efficacité par rapport à un cristal Na I de 76mmX76mm placé à 25 cm de la source est de 7%.
- le rapport "pic sur compton" est de 26
- la tension appliquée à ses bornes est de 2000 V.

Ce détecteur est muni d'un cryostat, canne plongeant dans un vase Dewar rempli d'azote liquide (Union Carbide).
Il se trouve à l'intérieur d'une cellule de protection en plomb de dimensions internes 54X54X54 cm et de 10 cm d'épaisseur.

b) Une chaîne électronique associée composée de :

- Un préampli PSC 44 et un ampli MAP 42 de marque SAIP
- Un Didac analyseur 4000 canaux, convertisseur C 44, horloge HB 23, stabilisateur A 16 b.
- Un calculateur Multi 8 Intertechnique 12 K qui est utilisé pour déterminer la surface des pics et leur énergie.
- Une bande magnétique AMPEX TMZ, une télétype, une perforatrice Tally, une imprimante I E R.

Il existe également un passeur automatique supportant au maximum 12 échantillons.

2 - Traitement de l'information :

a) Etapes principales

Une fois le comptage terminé, nous pouvons traiter immédiatement le spectre grâce au minicalculateur Multi 8. Un programme, rentré dans sa mémoire, permet de déterminer l'énergie des raies gamma et leur surface, et de transcrire le spectre sur la bande magnétique après lui avoir attribué un label de 8 caractères.
Le temps de transfert est de l'ordre de 4 secondes.

Nous pouvons lire et relire à volonté les spectres ainsi enregistrés.

Le contenu de cette bande magnétique peut ensuite être transféré sur une autre bande magnétique de stockage, par l'intermédiaire d'un programme écrit en PL 1, et ainsi être traité par l'ordinateur IBM 360 - 50, selon les programmes SAMPO ou trace Benson.
La figure 7 résume ces différentes étapes.

b) Calcul de la surface des pics

Le traitement d'un pic met en jeu plusieurs étapes : le lissage éventuel de ses points, la recherche de son abscisse qui permettra de déduire son énergie, le choix des deux canaux délimitant sa base pour l'évaluation du bruit de fond, et le calcul de la surface qui permet d'obtenir l'activité de l'isotope.
Le principe et les méthodes ont été décrits dans les articles de L.C. CARRAZ (17) et de O. MARBACH (18).

* Multi 8

Dans le cas du Multi 8, le calcul de l'abscisse du pic repose sur l'hypothèse que ses flancs droit et gauche sont symétriques par rapport à un axe vertical.
Pour chaque point du pic, le programme effectue un lissage polynomial sur le point considéré et les deux points en amont et en aval. Il obtient ainsi une valeur lissée du contenu de chaque canal. Les bornes du pic sont fixées par l'opérateur d'après la visualisation du spectre sur l'oscilloscope. Le bruit de fond est pris linéairement entre les deux points lissés des bornes inférieures et supérieures.
La surface est déterminée par addition des valeurs lissées du contenu de chaque canal, après soustraction du bruit de fond.

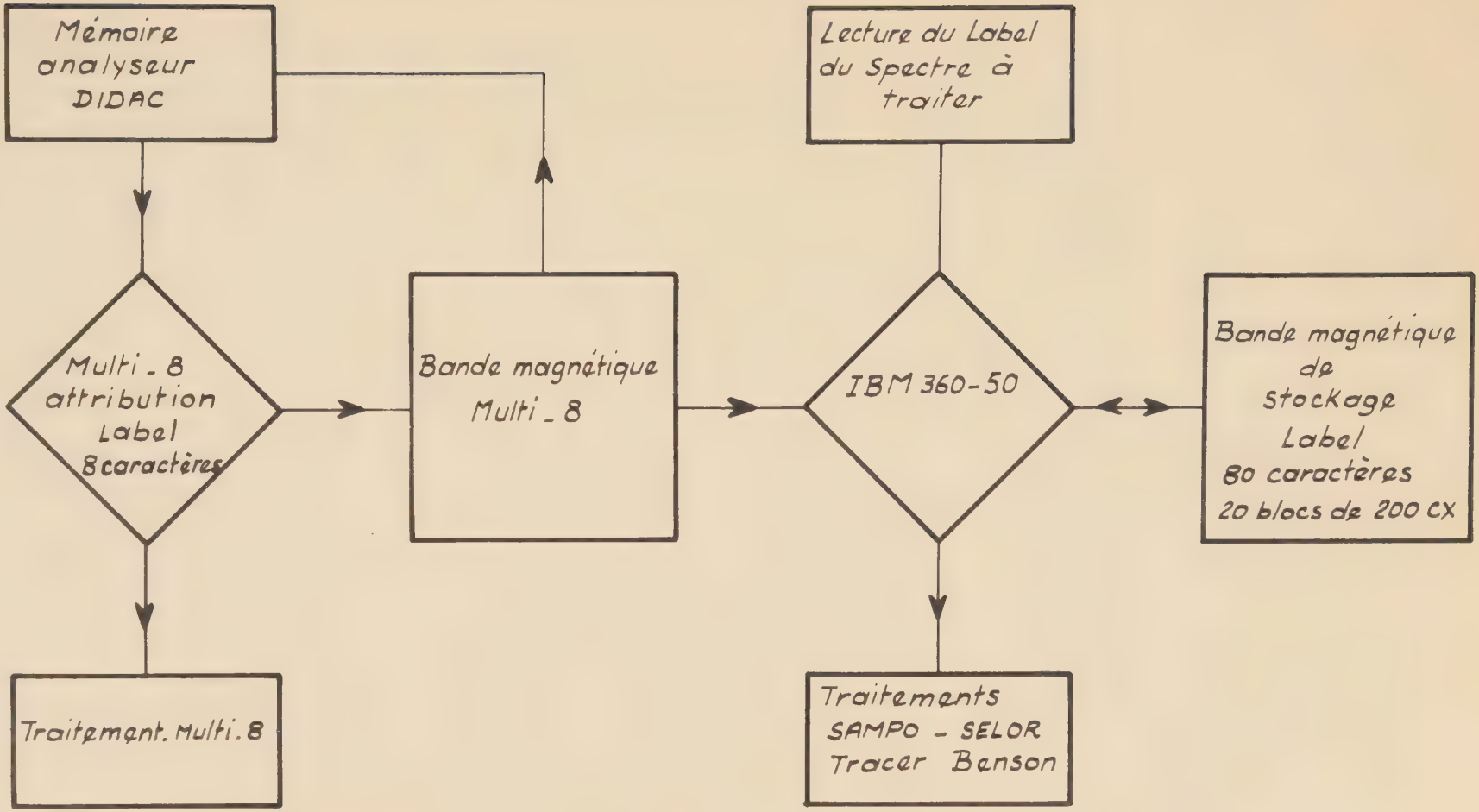


Fig 1

Figure - 1

Ce programme n'est pas capable d'analyser correctement des pics composés. Il nous faut alors l'aide du programme plus élaboré "SAMPO".

* Cas de SAMPO

(UCRL)-14952 UC-34 Physics TID 4500)

Ce programme fait une recherche automatique des pics en analysant les valeurs de la dérivée seconde tout le long du spectre. Il détermine ensuite ses bornes approximatives en recherchant les minima à droite et à gauche du pic.
Il tient compte aussi des fluctuations statistiques de part et d'autre des bornes du pic. Nous pouvons également imposer ces bornes. Une approximation de la forme du pic est, obtenue avec une gaussienne ajustée sur le sommet, et raccordée de chaque côté du pic par deux exponentielles telles que les fonctions et leurs premières dérivées soient continues.
L'évaluation du bruit de fond est faite soit par un tracé linéaire entre les bornes, soit par un tracé parabolique, ce qui permet d'optimiser le traitement.
Ce programme élaboré de décomposition des pics permet l'étude des multiplets : nous pouvons décomposer jusqu'à 6 pics à la fois. Des exemples seront montrés dans le chapitre 4.

c) Etalonnage en énergie

La méthode consiste à établir la relation qui lie l'abscisse de la raie gamma à son énergie réelle. Pour cela on utilise des isotopes dont le spectre d'énergie est bien connu. Il est nécessaire de couvrir toute la gamme d'énergie par un nombre suffisant d'étalons. Nous avons fait les mesures entre 70 keV et 4 MeV avec le plus souvent un gain permettant d'avoir environ 0,5 keV par canal. La valeur choisie des énergies des étalons est celle de GUNNINK (UCID 15439).
Pour une meilleure précision possible, nous avons initialement étalonné le système après deux séries de mesures :

- Une première où ont été incorporés à la source choisie un ou plusieurs isotopes-étalons : nous en avons déduit les énergies des raies principales de l'isotope inconnu.

- Une deuxième sans étalons : nous en avons déduit les valeurs de toutes les raies de l'isotope inconnu, ses raies principales servant alors d'étalon.

Ces couples abscisse-énergie ne peuvent pas être ajustés linéairement, aussi avons-nous calculé leur écart à la linéarité.

- Une première méthode consiste à ajuster les points expérimentaux précédents par des fonctions "Spline", morceaux de polynôme de degré n, se raccordant pour toutes les dérivées d'ordre n-1. Pour notre étude nous avons pris n = 3.

- La deuxième méthode est celle utilisée par le programme SAMPO : il ajuste par moindre carrés linéaires le polynôme suivant :

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^{n} \frac{1}{Di} \left\{ Ei - \sum_{\gamma=1} pi\,j\, C_i^{\gamma-1} \right\}^2$$

Ci = abscisse de la raie i en canal

Ei = énergie

Di = incertitude

γ = nombre de coefficients

Pij = coefficients du polynôme

n = nombre de points.

L'étude a été faite pour le degré 2.
Le programme SAMPO permet aussi de faire une interpolation linéaire en joignant chaque point par un segment de droite.

Le calculateur Multi 8 fait lui-même un étalonnage en utilisant trois couples canal-énergie que nous choisissons. Il fait passer une parabole par ces trois points. Le résultat est satisfaisant,

la précision étant de 0,05 keV.
Dans le cours de nos mesures, une vérification de la stabilité du système a pu être faite sur quelques raies principales des produits de fission : soient les pics à 145 keV du Ce 141, 293 keV du Ce 143, 537 keV du Ba 140, 1024 keV du SR 91, 1596 keV du La 140.

d) Etalonnage en efficacité

L'efficacité est un facteur propre au détecteur, variant avec l'énergie gamma, et qui n'est autre qu'une mesure du rapport entre l'intensité mesurée, et l'intensité réelle.
Nous avons mesuré l'efficacité relative du détecteur pour une zone totale allant de 120 à 3600 keV. Nous avons fait l'étude pour deux plages d'énergie :

152 Eu de 120 à 1400 keV
56 Co de 800 à 3600 keV

en sachant cependant que l'accord est bon entre les mesures concernant la gamme d'énergie commune. Nous avons choisi de préférence ces deux nuclides car leur riche schéma de désintégration et leurs constantes nucléaires sont très bien connus.
La méthode de calcul de l'efficacité est la suivante :
soient 2 raies gamma d'un même isotope : nous écrivons

$$\frac{S1}{\varepsilon 1 \gamma 1} = \frac{S2}{\varepsilon 2 \gamma 2}$$

Si S1 et S2 sont les surfaces respectives,

$\gamma 1$ et $\gamma 2$ les intensités absolues de chaque pic, $\varepsilon 1$ et $\varepsilon 2$ les efficacités relatives du détecteur pour ces 2 énergies.
En attribuant une valeur arbitraire pour $\varepsilon 1$, correspondant à l'énergie du pic 1 pris ainsi comme référence, nous pouvons déduire $\varepsilon 2$. Nous procédons de même pour toutes les autres raies gamma, en gardant toujours le pic 1 précédent comme référence.
Nous obtenons ainsi une variation relative de l'efficacité du détecteur en fonction de l'énergie des pics du spectre.
L'ajustement des points expérimentaux a été fait selon 2 méthodes

- Un programme fortran de moindres carrés linéaires détermine les coefficients de la fonction

$$\log\varepsilon = A + B\log E + C(\log E)^2$$

ε étant l'efficacité déterminée expérimentalement, et E l'énergie correspondante.

Nous avons posé $\varepsilon = 1000$ pour E = 300 keV.

Dans le cas de 152 Eu nous avons divisé arbitrairement la plage d'énergie en 2 zones : de 120 à 300 keV et de 300 à 1400 keV.

Nous obtenons donc 6 coefficients qui permettent de tracer une courbe .

	A1	= 7,206
Zone 120-300 keV	B1	= + 1,934
	C1	= - 0,265
	A2	= 17,379
Zone 300-1400 keV	B2	=- 1,514
	C2	= 0,026

- Le programme SAMPO minimise par moindres carrés non linéaires la fonction suivante :

$$\varepsilon = p1\,(E^{p2} + p3\, e^{p4\,E})$$

E étant l'énergie

p1, p2, p3, p4 les coefficients de la fonction.

Pour la zone d'énergie 120 - 2000 keV la précision obtenue varie de 5 à 10% ; cependant la précision sur l'efficacité est meilleure si l'on compare deux énergies gamma voisines de 200 à 300 keV.

La précision est aussi bien plus grande à haute énergie, l'absorption des rayonnements gamma n'étant pas négligeable à basse énergie (<300 keV).

Nous avons pris soin d'utiliser des sources de même géométrie et sensiblement même densité que celles utilisées lors de l'étalonnage en efficacité.

4ème CHAPITRE

MESURE DES RENDEMENTS

1- Principe de la méthode

Nous utilisons une méthode d'analyse par spectrométrie gamma directe au Ge/Li, mise au point au laboratoire de Chimie Nucléaire de Grenoble, et testée sur la fission de l'U 235 par neutrons thermiques, bien connue par diverses méthodes et surtout par spectrométrie de masse.
Cette méthode consiste à comparer à la surface d'une raie gamma d'un isotope de référence, les surfaces des raies gamma de nuclides appartenant à des chaînes isobariques différentes. Ceci nous permet de calculer les rendements à partir d'une valeur de référence fixée arbitrairement.
Nous verrons plus tard que cette méthode permet d'éliminer les termes de flux et section efficace, non toujours connus avec précision, mais nécessite de connaître parfaitement les données nucléaires de chaque isotope.

La figure 8 représente toutes les chaînes isobariques étudiées, le tableau 3 les données nucléaires utilisées pour chaque isotope. Nous avons choisi comme référence la chaîne 140 (fig. 8 d) dont nous mesurons le rendement cumulatif au niveau du baryum. Nous pouvons théoriquement commencer l'étude dès que ses précurseurs ont décru. Du fait de sa période (12,8 jours), cet isotope nous sert de référence pour le calcul des rendements de 16 chaînes, (tableau 4) au niveau d'éléments dont la période est supérieure à 8 à 9 heures.
Nous avons calculé les rendements cumulatifs, au niveau de nuclides de courte période, par rapport au ^{91}Sr (T=9,72 heures), son propre rendement ayant été déterminé relativement au ^{140}Ba.
Dans le cas des séparations chimiques le mode de mesure est le même : les calculs de rendement sont faits par rapport à un

Les Z_p sont ceux de la fission du ^{232}Th par neutrons de reacteurs (10)

85 — $Z_p = 33,33$

$^{32}Ge \xrightarrow{2,1\,S} {}^{33}As \xrightarrow{39\,S} {}^{34}Se \xrightarrow{3\,N} {}^{35}Br \rightarrow {}^{36}Kr_{\beta} \xrightarrow{10,7\,ans} {}^{37}Rb$ stable

$^{35}Br \rightarrow {}^{36}Kr_m$ (27,8 %) ; $^{36}Kr_m \rightarrow {}^{36}Kr_{\beta}$ (78,2 %)

$^{36}Kr_m$: 4,4 H

87 — $Z_p = 34,23$

$^{34}Se \xrightarrow{5,8\,D} {}^{35}Br \xrightarrow{55,6\,S} {}^{36}Kr \xrightarrow{76\,M} {}^{37}Rb \xrightarrow{5.10^{10}\,ans} {}^{38}Sr$ stable

$^{37}Rb \rightarrow {}^{38}Sr_m$ (70 %) ; $^{38}Sr_m$: 2,83 H

88 — $Z_p = 34,72$

$^{34}Se \xrightarrow{16\,S} {}^{35}Br \xrightarrow{2,8\,H} {}^{36}Kr \xrightarrow{17,7\,M} {}^{37}Rb \rightarrow {}^{38}Sr$ stable

91 — $Z_p = 36,38$

$^{36}Kr \xrightarrow{8,6\,S} {}^{37}Rb \xrightarrow{57,9\,S} {}^{38}Sr \xrightarrow{9,7\,H} {}^{39}Y_{\beta} \xrightarrow{58,8\,J} {}^{40}Zr$ stable

$^{38}Sr \rightarrow {}^{39}Y_M$ (61 %) ; $^{39}Y_M$: 50,5 M

92 — $Z_p = 36,88$

$^{36}Kr \xrightarrow{1,84\,S} {}^{37}Rb \xrightarrow{4,48\,S} {}^{38}Sr \xrightarrow{2,69\,H} {}^{39}Y \rightarrow {}^{40}Zr$ stable

93 — $Z_p = 37,26$

$^{36}Kr \xrightarrow{1,29\,S} {}^{37}Rb \xrightarrow{5,9\,S} {}^{38}Sr \xrightarrow{7,5\,M} {}^{39}Y \xrightarrow{10,2\,H} {}^{40}Zr \xrightarrow{9,5.10^{5}\,ans}$

95 — $Z_p = 37,99$

$^{38}Sr \xrightarrow{26\,S} {}^{39}Y \xrightarrow{10,5\,M} {}^{40}Zr \xrightarrow{65\,J} {}^{41}Nb_{\beta} \xrightarrow{35\,J} {}^{42}Mo$ stable

$^{40}Zr \rightarrow {}^{41}Nb_M$ (1,3 %) ; $^{41}Nb_M$: 87 H

97 — $Z_p = 38,65$

$^{38}Sr \xrightarrow{0,4\,S} {}^{39}Y \xrightarrow{1,11\,S} {}^{40}Zr \xrightarrow{16,8\,H} {}^{41}Nb_{\beta} \xrightarrow{73,6\,M} {}^{42}Mo$ stable

$^{40}Zr \rightarrow {}^{41}Nb_M$ (7 %) ; $^{41}Nb_M$: 58 S

Fig 8a

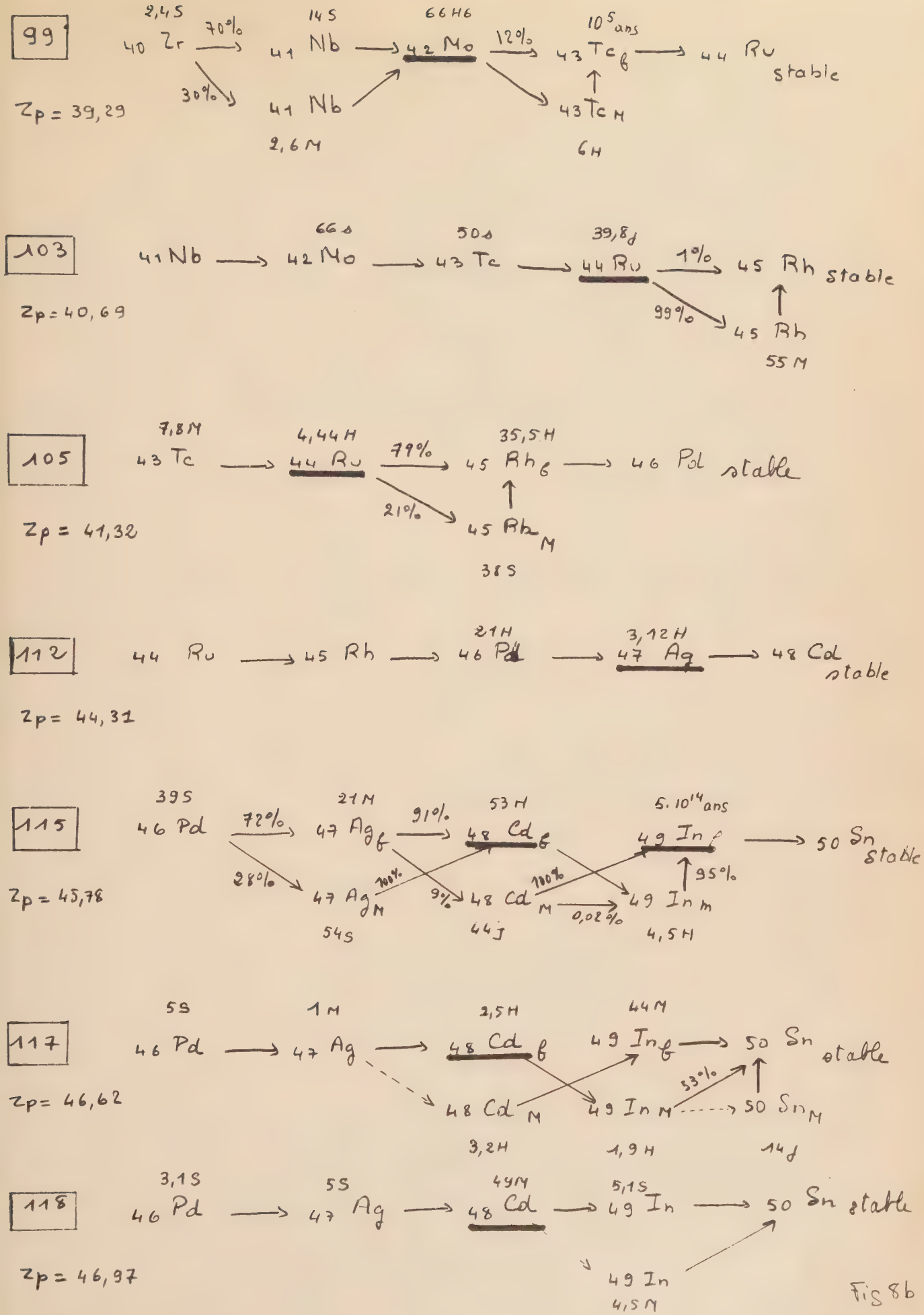
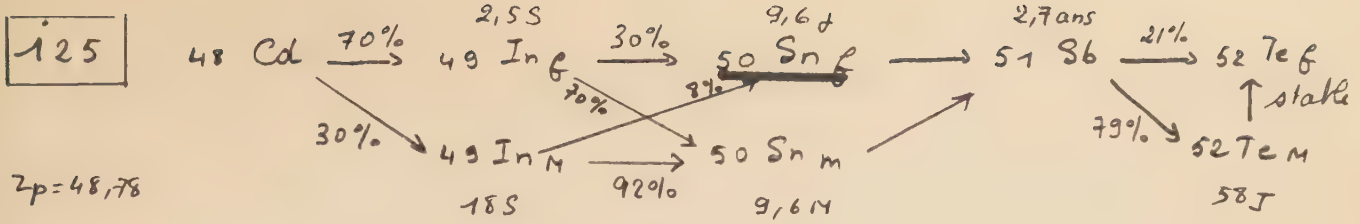
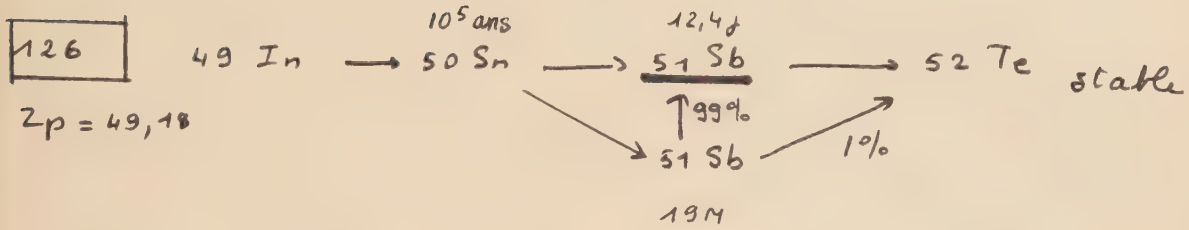
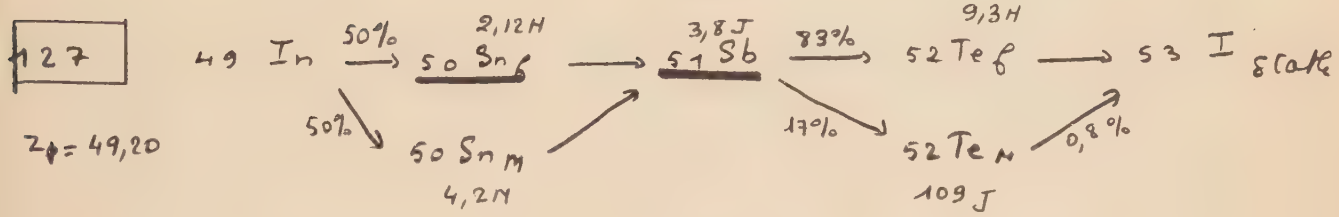
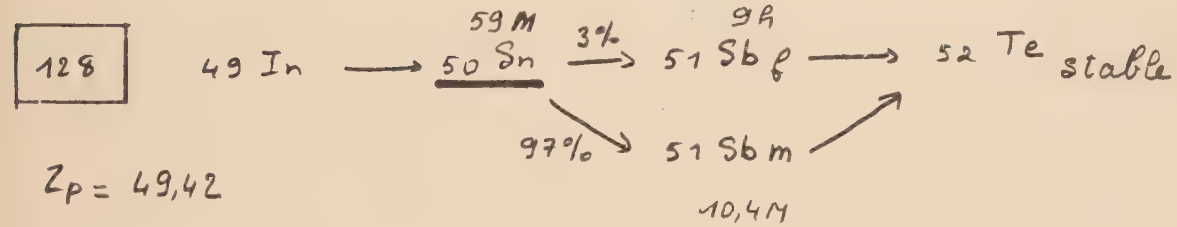

99
2,4 S
40 Zr
70%
14 S
41 Nb
66 H 6
42 Mo
12%
10^5 ans
43 Tc β
44 Ru stable
30%
41 Nb
2,6 M
43 Tc M
6 H
Zp = 39,29
103
41 Nb
66 s
42 Mo
50 s
43 Tc
39,8 j
44 Ru
1%
45 Rh stable
99%
45 Rh
55 M
Zp = 40,69
105
7,8 M
43 Tc
4,44 H
44 Ru
79%
35,5 H
45 Rh β
46 Pd stable
21%
45 Rh M
38 S
Zp = 41,32
112
44 Ru
21 H
45 Rh
46 Pd
3,12 H
47 Ag
48 Cd stable
Zp = 44,31
115
39 S
46 Pd
72%
21 M
47 Ag β
91%
53 H
48 Cd β
5.10^14 ans
49 In β
50 Sn stable
28%
47 Ag M
100%
9%
48 Cd M
100%
0,02%
49 In m
95%
54 S
44 J
4,5 H
Zp = 45,78
117
5 S
46 Pd
1 M
47 Ag
2,5 H
48 Cd β
44 M
49 In β
50 Sn stable
48 Cd M
49 In M
53%
50 Sn M
3,2 H
1,9 H
14 j
Zp = 46,62
118
3,1 S
46 Pd
5 S
47 Ag
49 M
48 Cd
5,1 S
49 In
50 Sn stable
49 In
4,5 M
Zp = 46,97

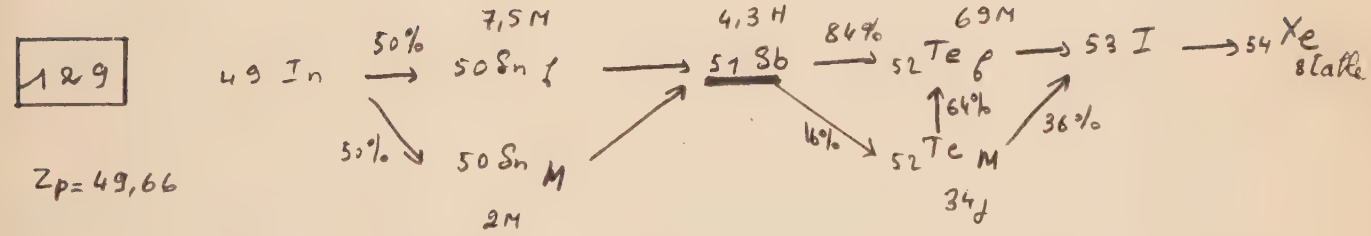
Fig 8b

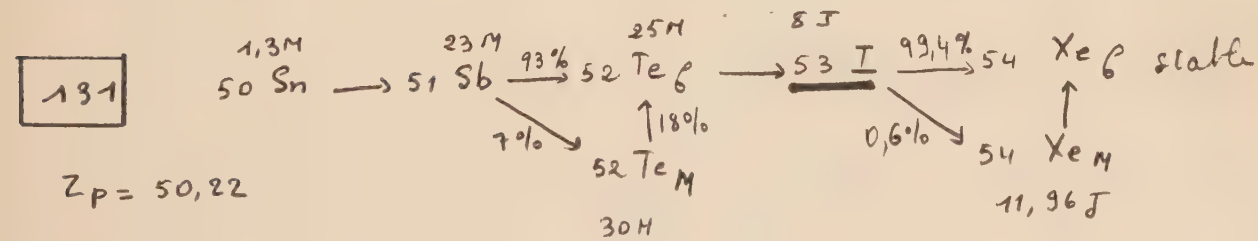

125
48 Cd
70%
2,5 S
49 In β
30%
9,6 J
50 Sn β
2,7 ans
51 Sb
21%
52 Te β
stable
30%
49 In M
18 S
92%
8%
70%
50 Sn M
9,6 M
79%
52 Te M
58 J
Zp = 48,78


126
49 In
10⁵ ans
50 Sn
12,4 J
51 Sb
52 Te
stable
99%
51 Sb
1%
19 M
Zp = 49,18


127
49 In
50%
2,12 H
50 Sn β
3,8 J
51 Sb
83%
9,3 H
52 Te β
53 I
stable
50%
50 Sn M
4,2 M
17%
52 Te M
109 J
0,8%
Zp = 49,20


128
49 In
59 M
50 Sn
3%
9 h
51 Sb β
52 Te
stable
97%
51 Sb m
10,4 M
Zp = 49,42


129
49 In
50%
7,5 M
50 Sn β
4,3 H
51 Sb
84%
69 M
52 Te β
53 I
54 Xe
stable
50%
50 Sn M
2 M
64%
16%
52 Te M
34 J
Zp = 49,66


131
1,3 M
50 Sn
23 M
51 Sb
93%
25 M
52 Te β
8 J
53 I
99,4%
54 Xe β stable
7%
52 Te M
30 H
18%
0,6%
54 Xe M
11,96 J
Zp = 50,22

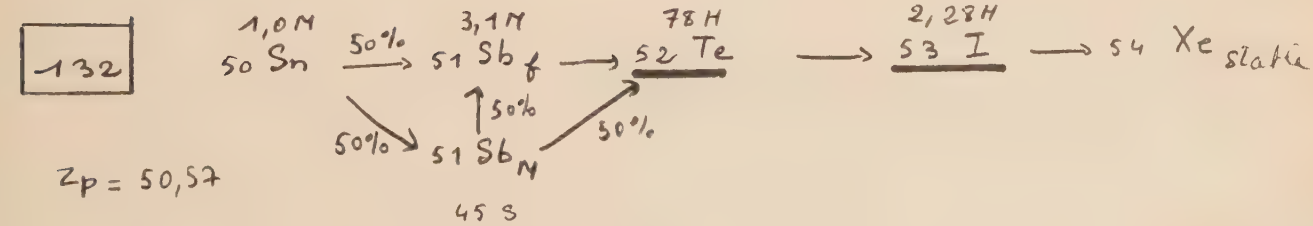
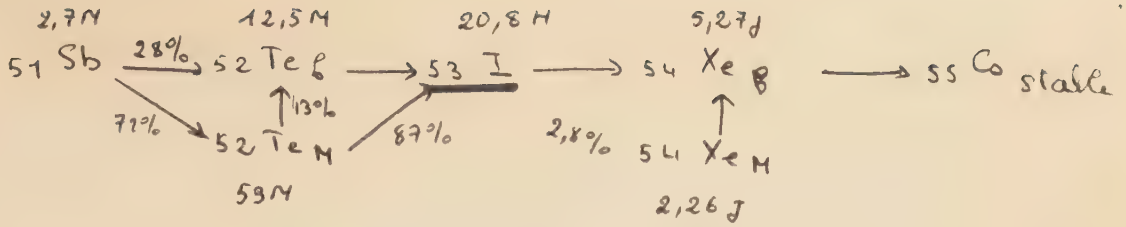

132
1,0 M
50 Sn
50%
3,1 M
51 Sb β
78 H
52 Te
2,28 H
53 I
54 Xe
stable
50%
50%
51 Sb M
45 S
50%
Zp = 50,57

Fig 8c

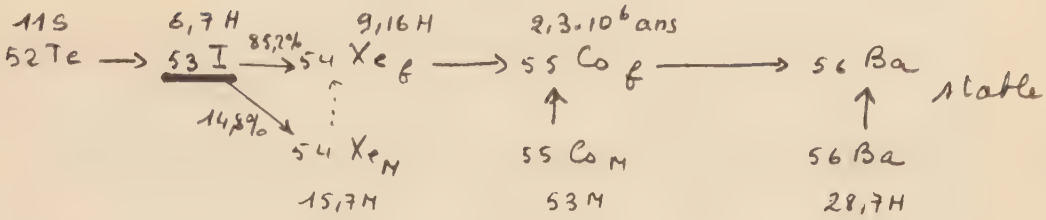
133

$Z_p = 51{,}00$



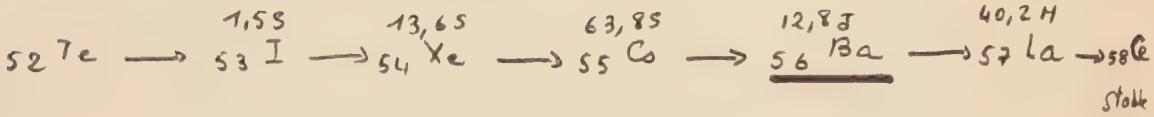
135

$Z_p = 51{,}81$



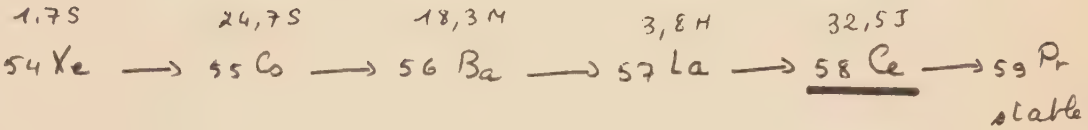
140

$Z_p = 53{,}97$



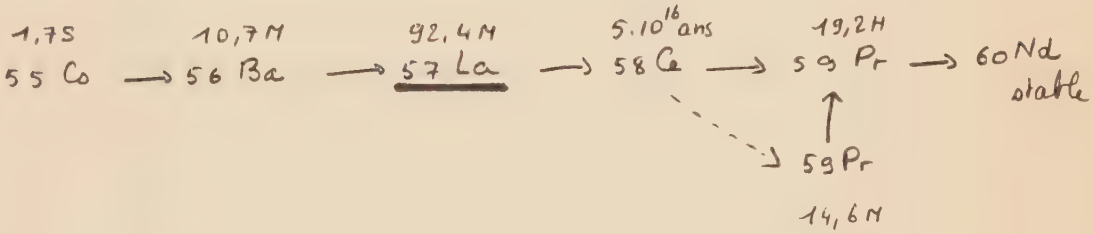
141

$Z_p = 54{,}53$



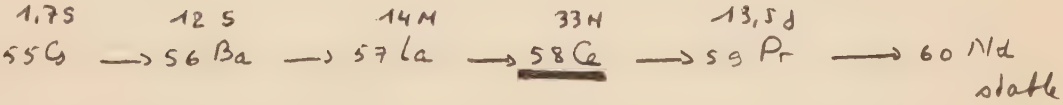
142

$Z_p = 55{,}05$



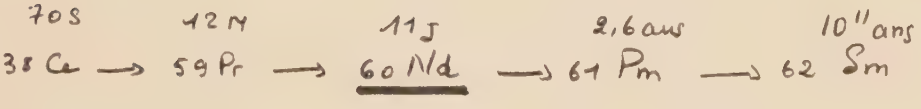
143

$Z_p = 55{,}52$



147

$Z_p = 57{,}32$



151

$Z_p = 58{,}63$

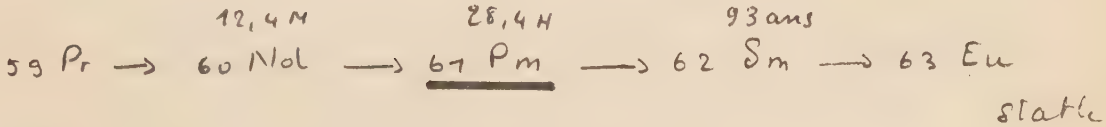


Fig 8.1

TABLEAU 3

pe	Energie	Intensité gamma	Lambda Elément	Lambda précurseur	Période élément	Période précurseur
85	305.00	13.30	0.438E-04	0.385E-02	4.39 H	3.00 MI
87	402.70	48.30	0.151E-03	0.124E-01	1.27 H	55.89 S
87	845.60	7.30	0.151E-03	0.124E-01	1.27 H	55.89 S
88	196.10	27.20	0.688E-04	0.437E-01	2.80 H	15.86 S
88	834.70	10.30	0.688E-04	0.437E-01	2.80 H	15.86 S
91	555.60	56.00	0.231E-03	0.198E-04	50.00 MIN	9.72 H
91	749.80	24.50	0.198E-04	0.119E-01	9.72 H	58.24 S
91	1024.30	34.00	0.198E-04	0.119E-01	9.72 H	58.24 S
92	1383.90	90.00	0.713E-04	0.154E-00	2.70 H	4.50 S
92	934.50	14.00	0.550E-04	0.713E-04	3.50 H	2.70 H
93	947.00	2.20	0.189E-04	0.154E-02	10.19 H	7.50 MI
95	756.70	54.60	0.123E-06	0.108E-02	65.21 J	10.69 MI
97	658.10	99.00	0.160E-03	0.113E-04	1.20 H	17.04 H
97	743.00	94.00	0.113E-04	0.630E-00	17.04 H	1.10
99	739.70	13.80	0.288E-05	0.481E-02	2.79 J	2.40 MI
03	497.20	90.00	0.201E-06	0.962E-02	39.90 J	1.20 MI
05	469.40	17.50	0.438E-04	0.148E-02	4.39 H	7.80 MI
05	724.30	44.50	0.438E-04	0.148E-02	4.39 H	7.80
12	616.80	43.50	0.602E-04	0.917E-05	3.20 H	20.99 H
15	336.20	45.00	0.438E-04	0.360E-05	4.39 H	2.23 J
15	527.80	27.50	0.360E-05	0.550E-03	2.23 J	21.00 MI
17	1234.50	39.50	0.529E-04	0.165E-01	3.64 H	42.00 SE
17	273.30	17.00	0.776E-04	0.165E-01	2.48 H	42.00 SE
18	1229.50	15.00	0.139E-00	0.231E-03	4.99 SEC	50.00 MI
26	695.10	100.00	0.637E-06	0.100E-20	12.59 J	***** A
27	1114.30	29.20	0.875E-04	0.187E-00	2.20 H	3.71 SE
27	823.10	8.20	0.875E-04	0.187E-00	2.20 H	3.71 S
27	685.70	36.80	0.217E-05	0.875E-04	3.70 J	2.20 H
27	473.00	25.10	0.217E-05	0.875E-04	3.70 J	2.20 H
28	482.00	55.00	0.192E-03	0.187E-00	1.00 H	3.71 S

?e	Energie	Intensité gamma	Lambda Elément	Lambda précursuer	Période élément	Période précurseur
29	812.80	43.50	0.448E-04	0.128E-02	4.30 H	9.02 MI
31	364.40	82.50	0.995E-06	0.642-05	8.06 J	1.25 J
32	772.70	75.00	0.845E-04	0.247E-05	2.28 H	3.25 J
32	228.20	88.00	0.247E-05	0.373E-02	3.25 J	3.10 MI
33	529.90	89.00	0.917E-05	0.210E-03	20.99 H	55.00 MI
35	1131.60	22.10	0.287E-04	0.385E-01	6.71 H	18.00 SE
35	1260.50	29.30	0.287E-04	0.365E-01	6.71 H	18.99 SE
40	537.30	24.00	0.626E-06	0.108E-01	12.81 J	1.07 MI
40	487.00	46.50	0.479E-05	0.626E-06	1.67 J	12.81 J
41	145.40	49.30	0.247E-06	0.449E-04	32.47 J	4.29 H
42	641.20	46.50	0.136E-03	0.105E-02	1.42 H	11.00 MI
43	293.30	46.50	0.583E-05	0.825E-03	1.38 J	14.00 MI
47	531.00	13.10	0.724E-06	0.962E-03	11.08 J	12.01 MI
49	424.00	8.20	0.113E-03	0.502E-02	1.70 H	2.30 MI
51	339.90	24.00	0.678E-05	0.962E-03	1.18 J	12.01 MI

140	91	A, B
	95	A
	99	A
	103	A
	112	A
	115	A, B
	127	A
	131	A
	132	A
	133	A
	141	A, B
	143	A, B
	147	A, B
	151	B

91	92	B
	93	B
	97	A
	105	A
	142	B
	143	B
	149	B

115	117	B
	118	B

103	105	B

127	126	B
	128	B
	129	B

A = Sans séparation chimique

B = Avec séparation chimique

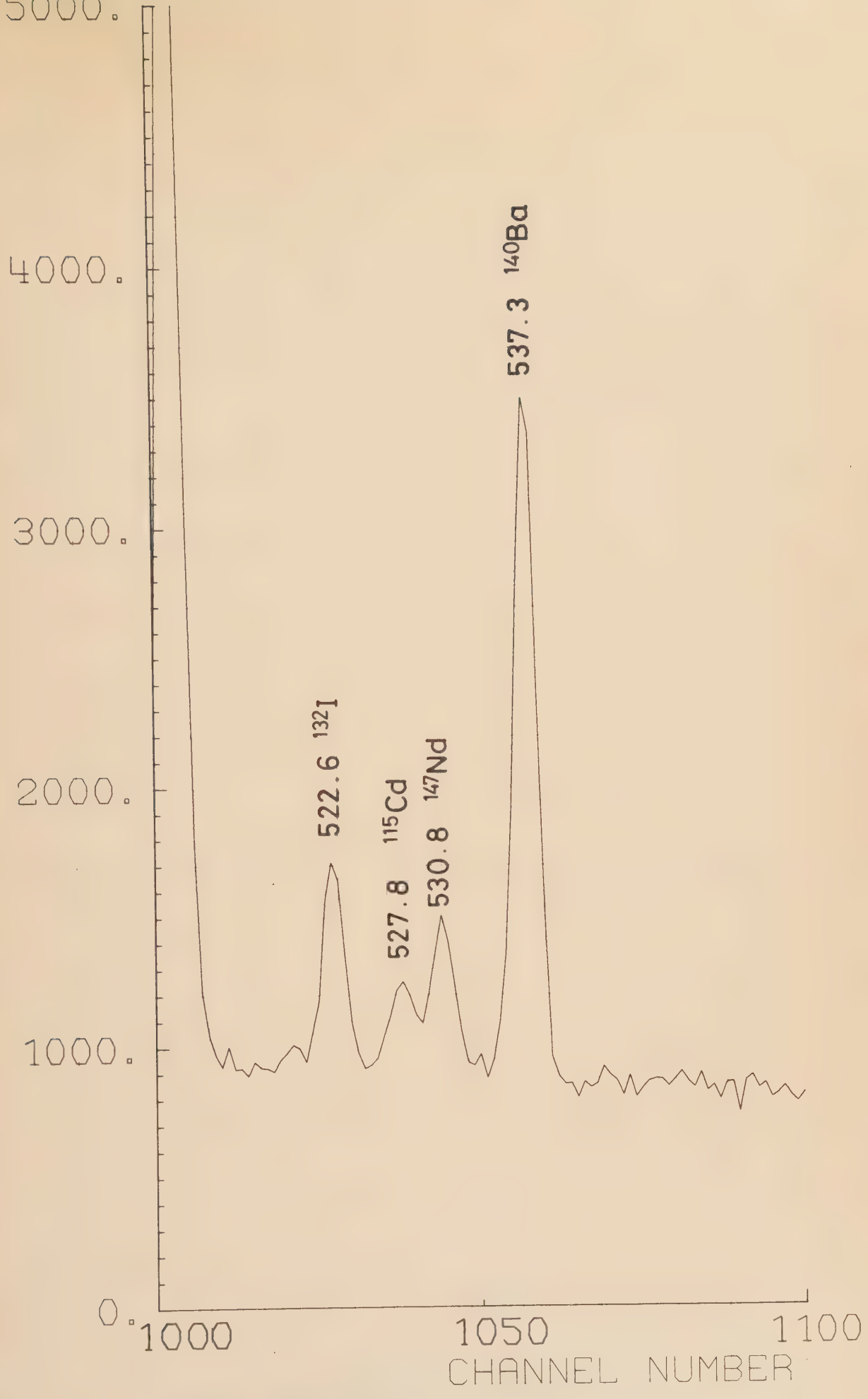
Liste des chaînes isobariques étudiées, avec, à gauche de chaque trait, la chaîne de référence

Tableau 4

isotope de référence dont le rendement cumulatif avait pu être déterminé par rapport au ^{140}Ba.
Nous allons examiner les différents cas :

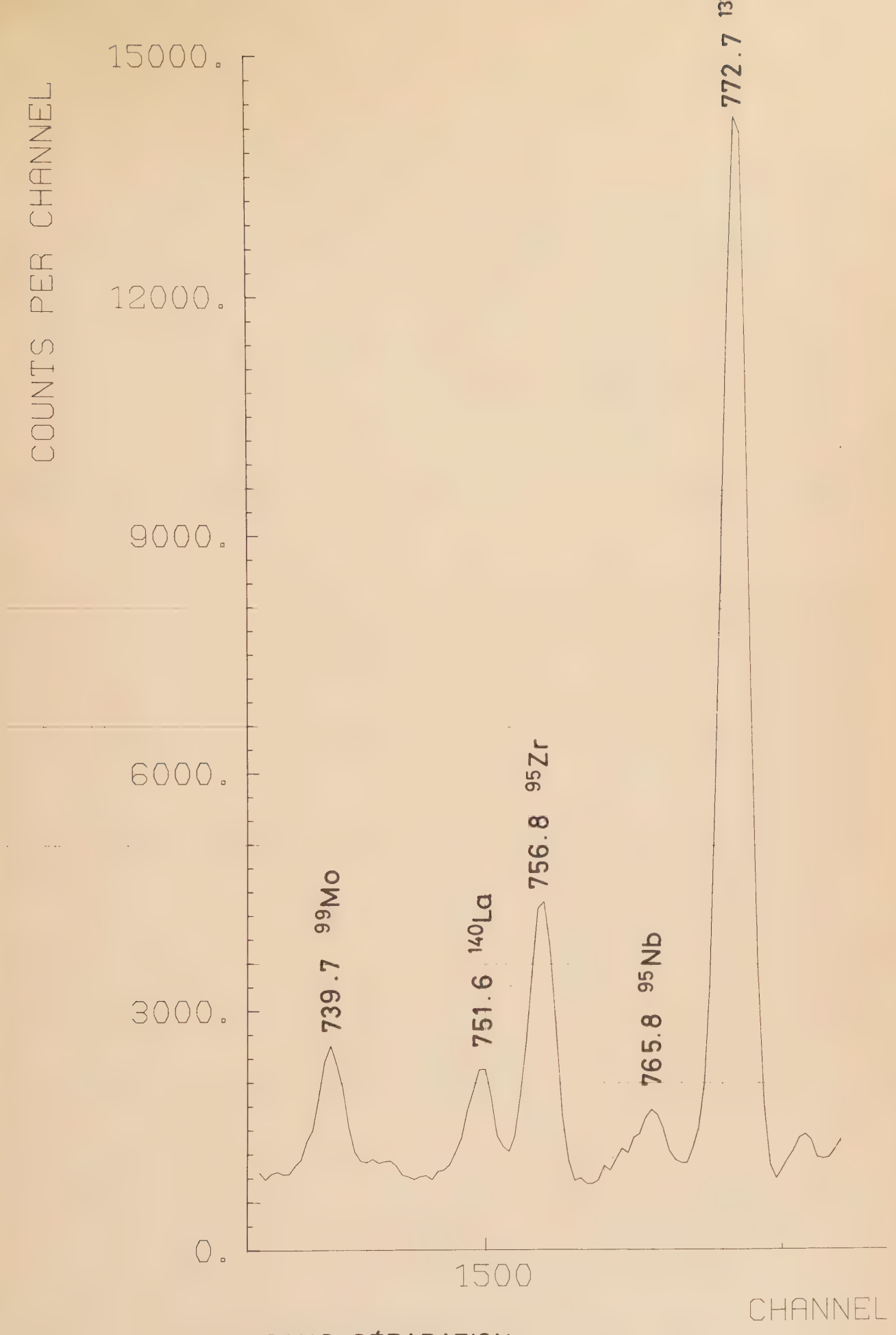
a) Cas où ^{140}Ba sert de référence

La figure 9 représente le pic gamma de 537,3 keV du 140 Ba dans une analyse sans séparation chimique. Le temps de refroidissement a été choisi de telle sorte que nous voyons également les pics gamma de 530.8 de ^{147}Nd, du 527.8 de ^{115}Cd et de 522.6 de ^{132}I. Ce comptage a eu lieu après une irradiation à 14 MeV. Dans le cas d'irradiation aux neutrons de réacteurs le ^{115}Cd n'est pas aussi visible du fait de son faible rendement.
Les figures 10, 11, 12, 13, 14 sont des portions de spectre montrant les raies gamma des nuclides dont le rendement cumulatif est calculé par rapport au ^{140}Ba.
Les cas complexes de décomposition ont été traités par SAMPO tels le ^{99}Mo, ^{95}Zr (fig.10).
Dans le spectre de l'échantillon de thorium irradié à 14 MeV sont bien visibles les raies gamma de ^{127}Sb et de ^{103}Ru. Leur statistique est faible ce qui rend difficile l'évaluation de leur rendement. La figure 14 montre combien ces deux éléments sont faibles par rapport au ^{140}La, leur voisin, qui est produit avec un rendement de fission maximum. Ce sont peut être là les limites de notre méthode qui nécessite d'avoir des raies gamma dont les paramètres sont bien connus, mais aussi dont la surface est suffisamment importante de manière à minimiser les erreurs.
Le cas de ^{112}Ag est identique. La raie de 616.8 keV interfère avec celle de 619.5 keV de ^{91}Sr. Cependant il est suffisamment intense à 14 MeV (fig. 15) mais des problèmes se posent lorsqu'il s'agit de le mesurer dans le cas d'irradiation aux neutrons de réacteurs. La figure 16 est le résultat d'une décomposition par SAMPO. Le ^{91}Sr a un rendement plus élevé qu'à 14 MeV alors que c'est l'inverse pour l'argent 112.



SANS SÉPARATION Réf. = 9 j TCO = 20 h

Fig 9



COURBE 1 SANS SÉPARATION Réf. = 7 j TCO = 20 h

Fig 10

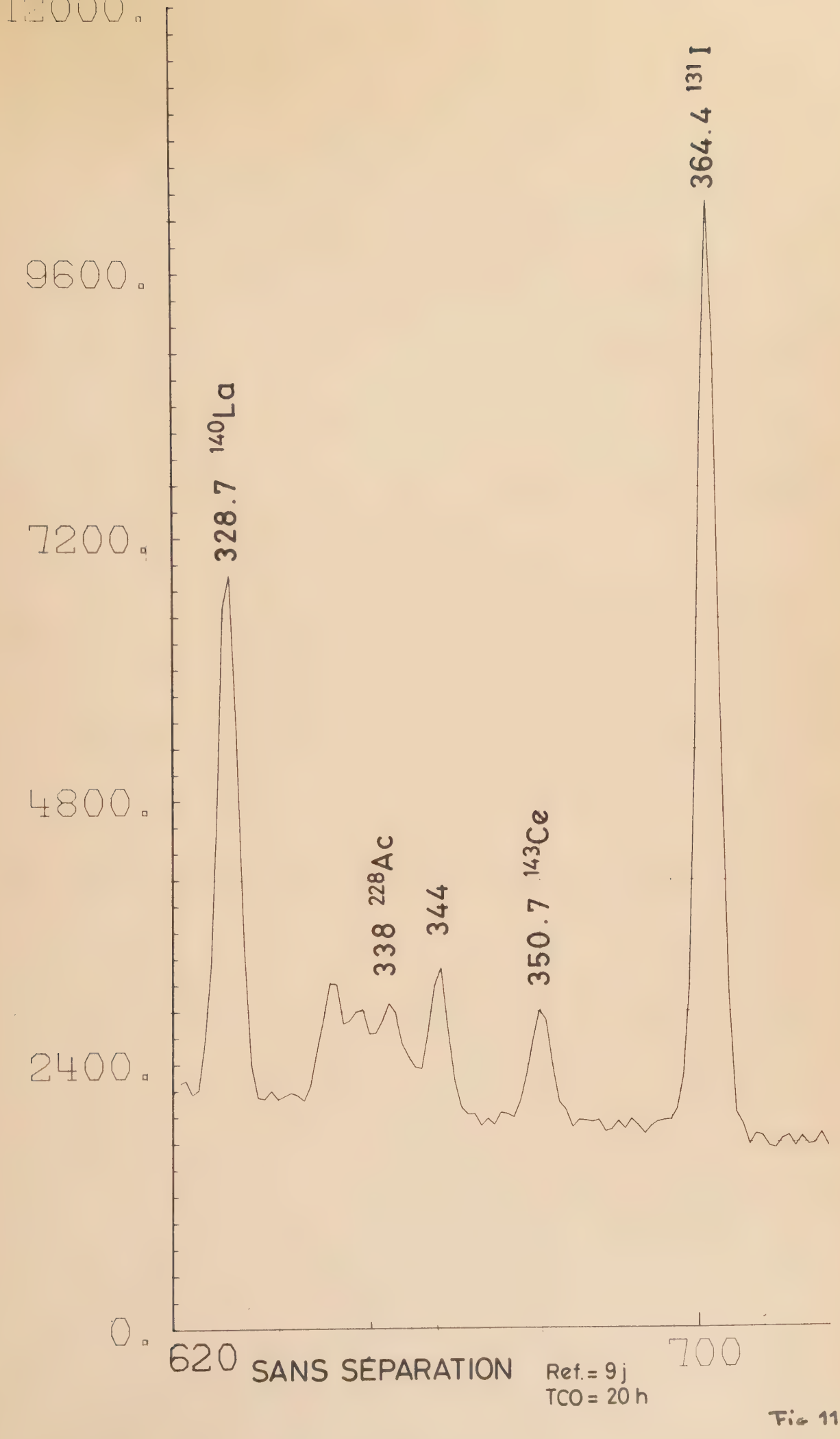

12000.
9600.
7200.
4800.
2400.
0.
328.7 140La
338 228Ac
344
350.7 143Ce
364.4 131I
620
700
SANS SÉPARATION
Ref. = 9 j
TCO = 20 h

Fig 11

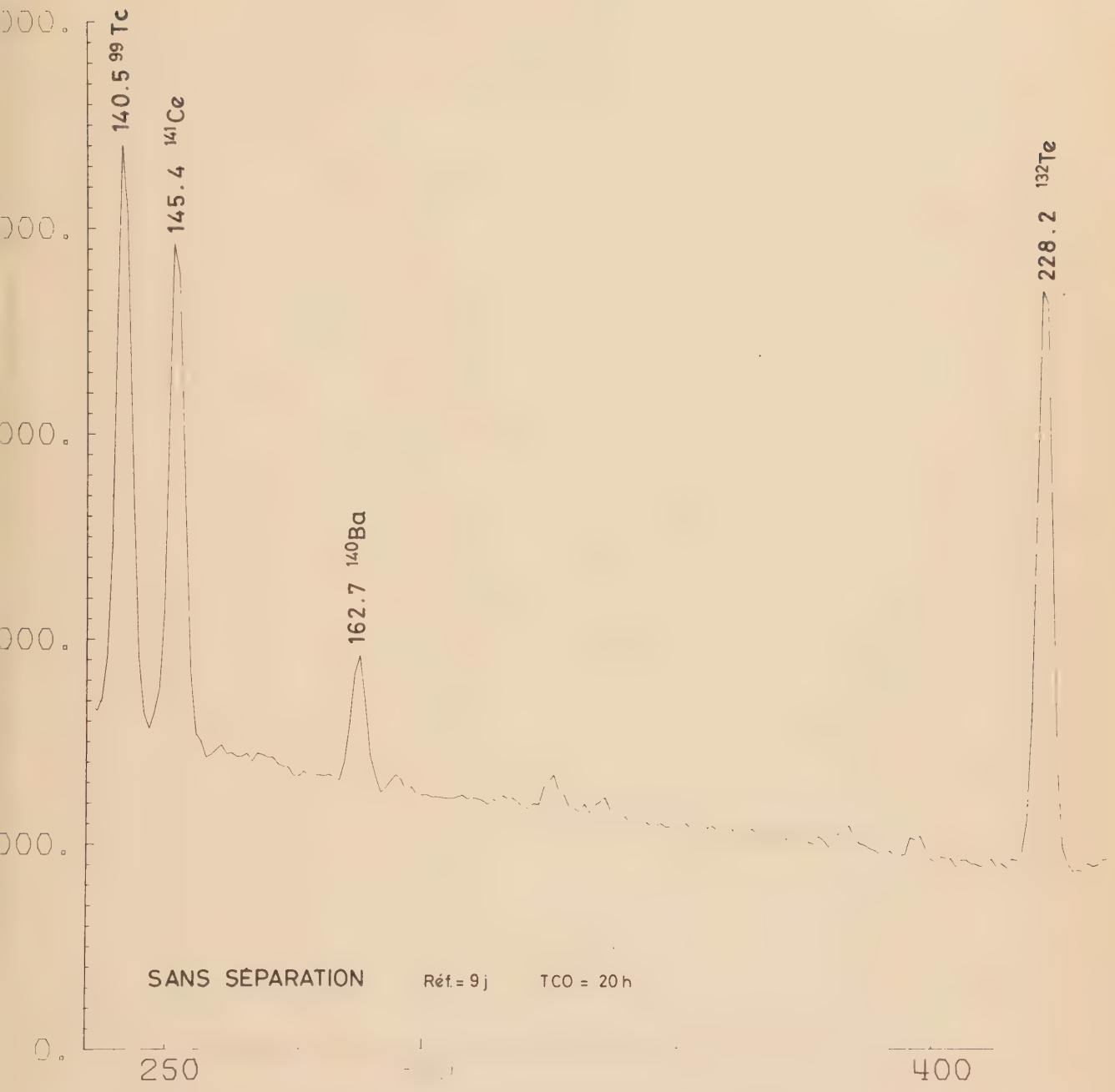
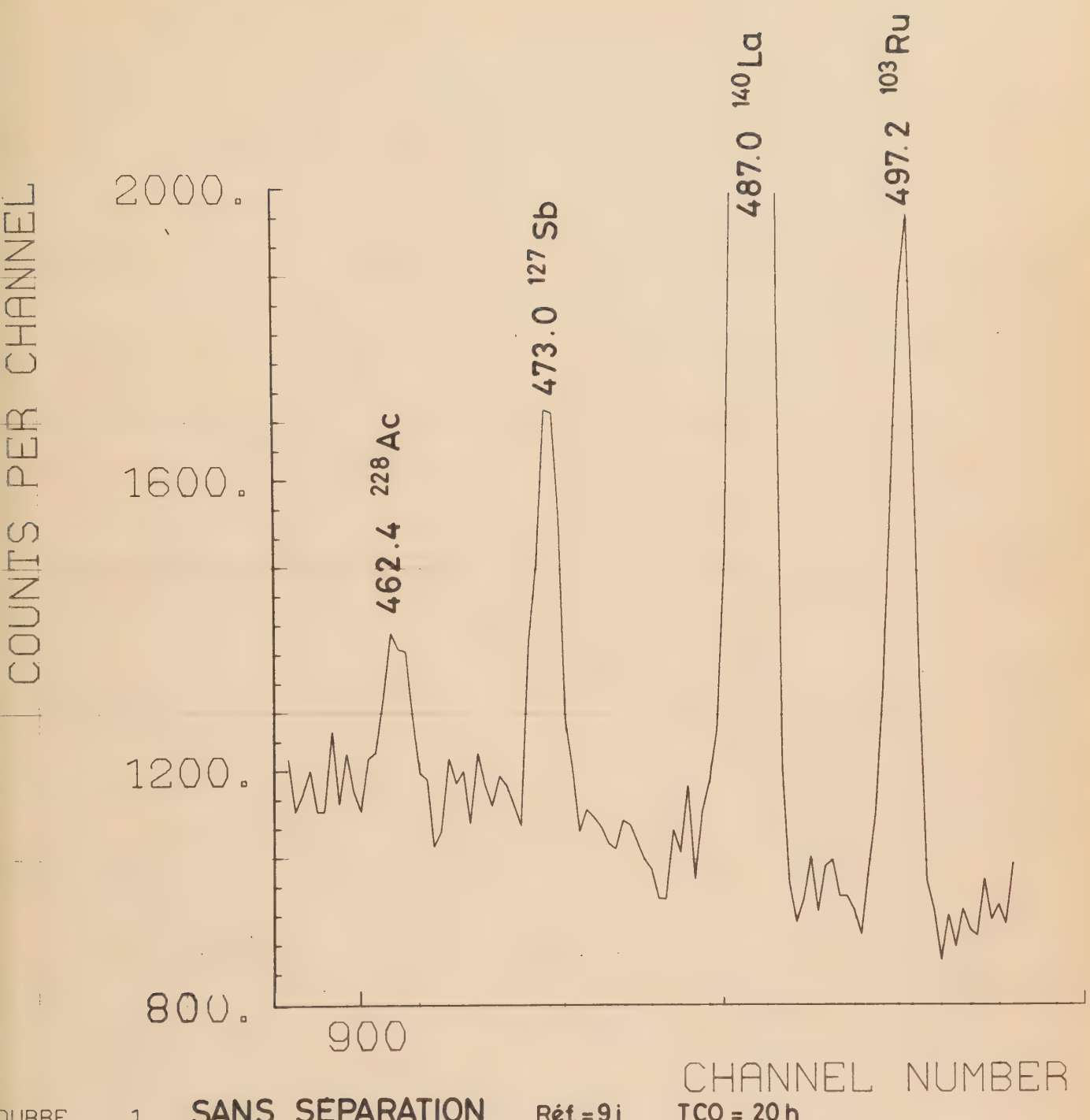

000.
000.
000.
000.
000.
0.
140.5 99Tc
145.4 141Ce
162.7 140Ba
228.2 132Te
SANS SÉPARATION
Réf. = 9 j
TCO = 20 h
250
400

Fig 12

15000.
12000.
9000.
6000.
3000.
0.
293.3 143Ce
SANS SÉPARATION
Rét. = 25 h
500
600
CHANNEL NUMBER

Fig 13



COURBE 1 **SANS SEPARATION** Réf. = 9 j TCO = 20 h

Fig 14

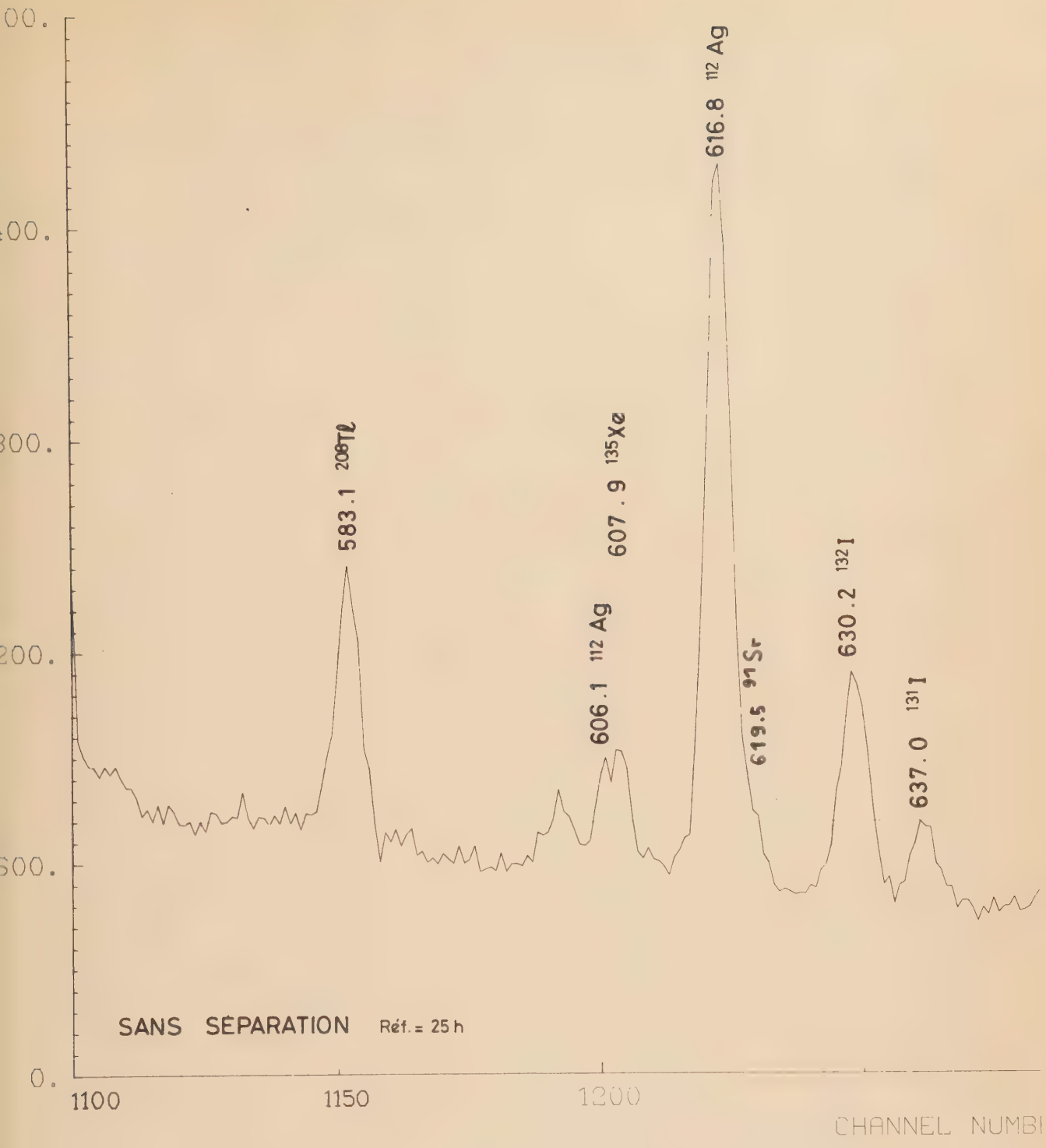

583.1 208Tl
606.1 112Ag
607.9 135Xe
616.8 112Ag
619.5 91Sr
630.2 132I
637.0 131I
SANS SÉPARATION Réf. = 25 h
1100
1150
1200
CHANNEL NUMBI

Fig 15

AL F OR CHISQR = 2.66774E 01+OR- 3.05176E-05
AL PARAMETERS = 7.939E 02 -2.568E 00 0.0 2.537E 02 1.227E 03 4.200E 02 1.233E 03

AL GRADIENT = -1.241E-04 -2.343E-03 1.159E 01 1.171E-04 -1.552E-02 -1.734E-05 -6.998E-02

	DEV.	CONTINUUM YMIN= 7.300E 02 IIIIIIIII SEMILOGARITHMIC SCALE IIIIIIIII YMAX= 1.201E 03	DATA	FIT
	-0.4	8.30E 02	8.190E 02	8.305E 02
	1.9	8.27E 02	8.850E 02	8.285E 02
	-2.0	8.25E 02	7.720E 02	8.268E 02
	0.6	8.22E 02	8.440E 02	8.258E 02
	1.5	8.20E 02	8.700E 02	8.259E 02
	-1.2	8.17E 02	7.930E 02	8.279E 02
	-0.2	8.14E 02	8.270E 02	8.332E 02
	-1.2	8.12E 02	8.100E 02	8.441E 02
	-0.4	8.09E 02	8.540E 02	8.647E 02
	0.3	8.07E 02	9.120E 02	9.021E 02
	0.8	8.04E 02	9.930E 02	9.681E 02
	-0.6	8.02E 02	1.031E 03	1.051E 03
	0.2	7.99E 02	1.074E 03	1.067E 03
	0.2	7.96E 02	1.018E 03	1.010E 03
	-0.7	7.94E 02	9.230E 02	9.447E 02
	0.8	7.91E 02	9.560E 02	9.308E 02
	0.8	7.89E 02	1.009E 03	9.849E 02
	1.2	7.86E 02	1.151E 03	1.109E 03
	-2.0	7.84E 02	1.132E 03	1.201E 03
	-0.2	7.81E 02	1.146E 03	1.153E 03
	1.0	7.78E 02	1.038E 03	1.006E 03
	0.7	7.76E 02	8.910E 02	8.715E 02
	0.3	7.73E 02	8.090E 02	8.009E 02
	0.4	7.71E 02	7.870E 02	7.762E 02
	0.1	7.68E 02	7.720E 02	7.689E 02
	-1.3	7.66E 02	7.300E 02	7.657E 02
	0.7	7.63E 02	7.840E 02	7.630E 02
	0.1	7.60E 02	7.620E 02	7.605E 02
	-0.2	7.58E 02	7.530E 02	7.579E 02
	-0.7	7.55E 02	7.360E 02	7.553E 02

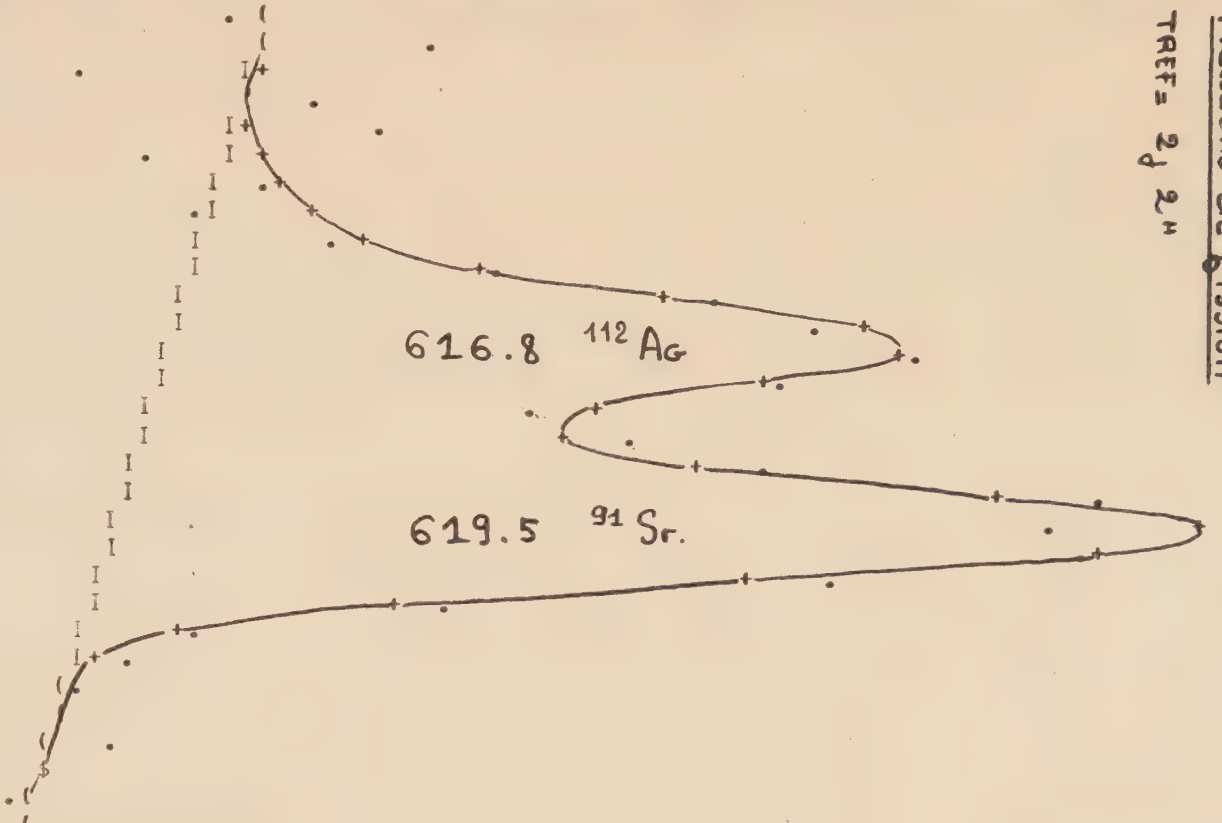


Fig 16

SYMBOLS I = CONTINUUM . = DATA + = FIT * = .AND+ (= IAND+) = IAND. $ = IAND+AND.

DATA= 3.10369E 03 SUMCALC= 3.07698E 03

RESULTS FROM THE ABOVE FIT, BE CRITICAL WITH THE ERROR ESTIMATES
REJECT IF CHISQUARE = 0.2668E 02 OR SIGMA = 1.077 IS UNACCEPTABLE, CHECK PLOT FOR MISSING PEAKS

CHANNEL	FIT-ESE-CH	ENERGY-KEV	CAL-ERR-KEV	EN-ERR-KEV	AREA-COUNTS	FIT-ERR-PC	INTENS-COUNT	CAL-ERR-PC	INT-ERR
26.6106	0.1333	616.8117	0.5000	0.5042	1.1574E 03	6.5206	1.1574E 03	0.0	6.5206
33.1924	0.0862	619.5227	0.5000	0.5018	1.9189E 03	3.9822	1.9189E 03	0.0	3.9822

NUMBER AND INDICATIVE DATA

Neutrons de réacteurs

1.090E 03 1.111E 03
1.123E 03 1.109E 03
1.117E 03 1.106E 03
1.162E 03 1.106E 03
1.139E 03 1.110E 03
1.104E 03 1.124E 03
1.099E 03 1.162E 03
1.226E 03 1.254E 03
1.402E 03 1.377E 03
1.483E 03 1.457E 03
1.451E 03 1.431E 03
1.270E 03 1.323E 03
1.237E 03 1.219E 03
1.198E 03 1.186E 03
1.170E 03 1.260E 03
1.434E 03 1.502E 03
1.863E 03 1.923E 03
2.436E 03 2.301E 03
2.418E 03 2.364E 03
2.087E 03 2.058E 03
1.508E 03 1.613E 03
1.237E 03 1.275E 03
1.069E 03 1.110E 03
1.123E 03 1.055E 03
1.079E 03 1.038E 03

HCL 12N Tref. = 4 J

Fig 17

b) Cas où le ^{91}Sr sert de référence

La figure 18 montre le pic gamma de 1024.3 keV du ^{91}Sr, (sans séparation chimique) bien séparé, auquel seront comparés les pics gamma suivants :

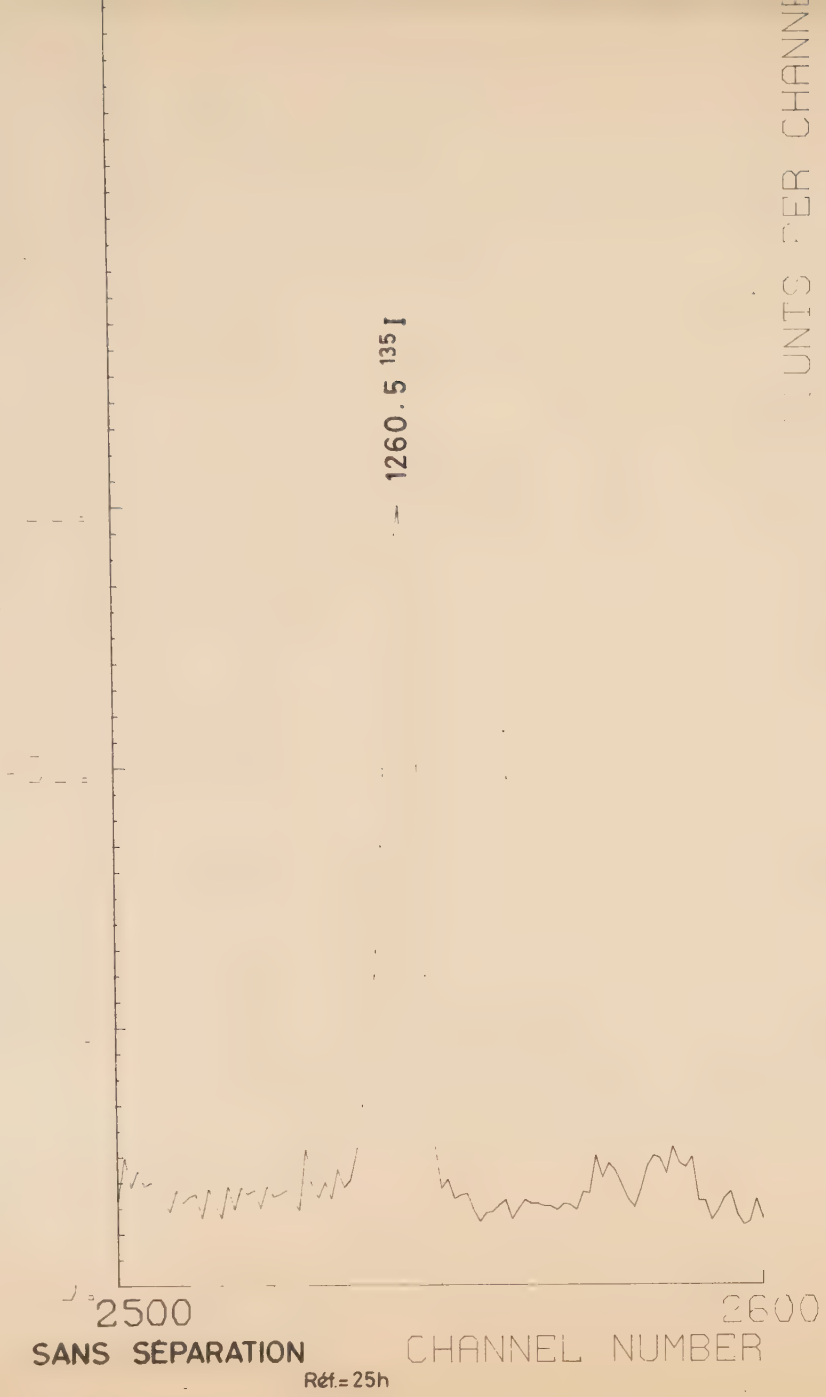
* le 1260.5 keV de ^{135}I (fig. 18)
* le 743 keV du ^{97}Zr (fig. 19 A) que l'on voit comparé à un temps de refroidissement plus long où l'allure du spectre s'est considérablement modifiée, laissant apparaître nettement le ^{99}Mo et ^{95}Zr (fig. 19 B).
* les pics gamma des figures 20, 21, 22 obtenus après séparation chimique et qui représentent le cas où le 934.5 keV de ^{92}Y, 293.3 keV de ^{143}Ce, 641.2 keV de ^{142}La et 424.0 de ^{149}Nd sont comparés au 1024.3 keV du ^{91}Sr.

La figure 19 est un cas de spectre typique où nous avons utilisé le programme SAMPO pour faire la décomposition des pics gamma. Une fois le rendement cumulatif du ^{91}Sr évalué par rapport au ^{140}Ba lors de comptages en "non destructif", nous avons déterminé ceux des nuclides précités.

c) Cas des ruthenium, antimoine, cadmium

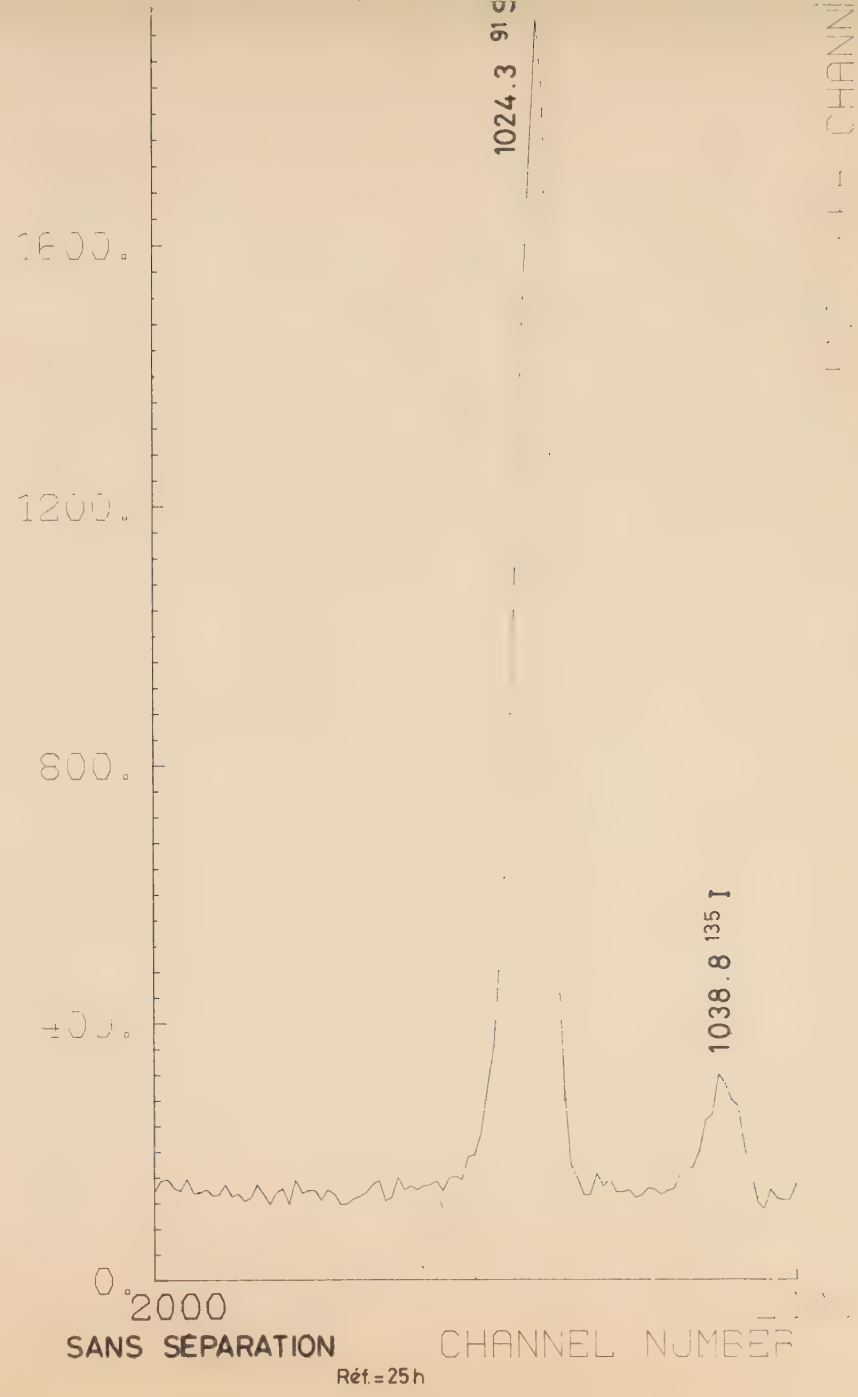
Dans le cas de la séparation des ruthenium la référence prise est la chaîne 103 (fig. 8 b). Il nous a fallu attendre, pour faire la séparation, que les précurseurs des ^{103}, ^{105}Ru aient décru,soit environ 1h 1/2 à 2 h après la fin de l'irradiation. La mesure sur le ^{105}Ru se fait à partir du pic gamma de 724.3 keV.

Dans le cas des antimoines, la configuration des chaînes 127 et 129 rend le problème compliqué (fig. 8 c). Le ^{127} Sn a une période de 2h12 et une partie de la chaîne passe par lui, l'autre partie par son isomère. Il faudrait donc attendre plus d'un jour pour extraire ^{127}Sb, or nous sommes limités par ^{129}Sb dont la période est 4,3 h. Nous avons fait des séparation



SANS SÉPARATION

Réf. = 25h

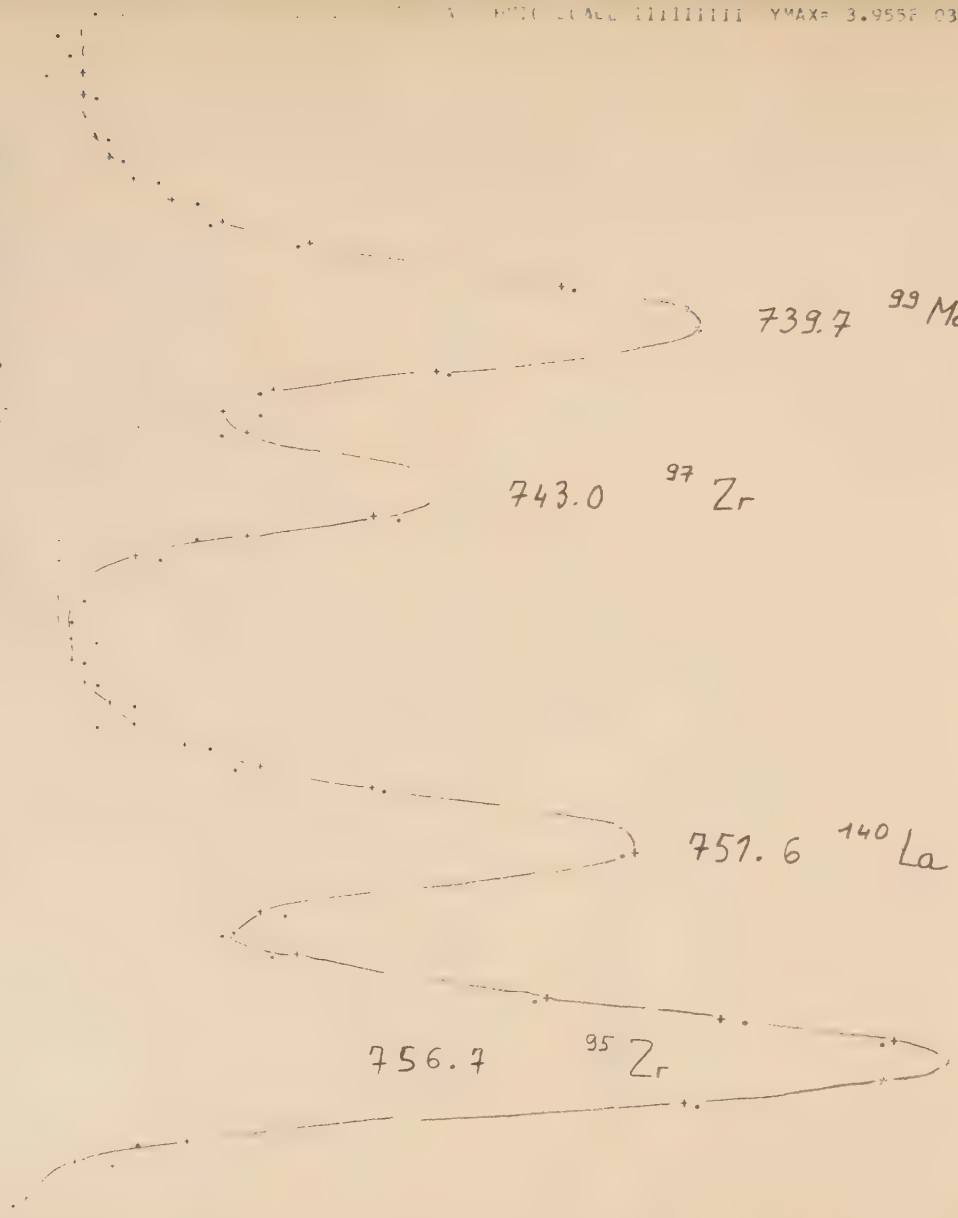


SANS SÉPARATION

Réf. = 25h

Fig 18

NON DESTRUCTIF TREF. 65



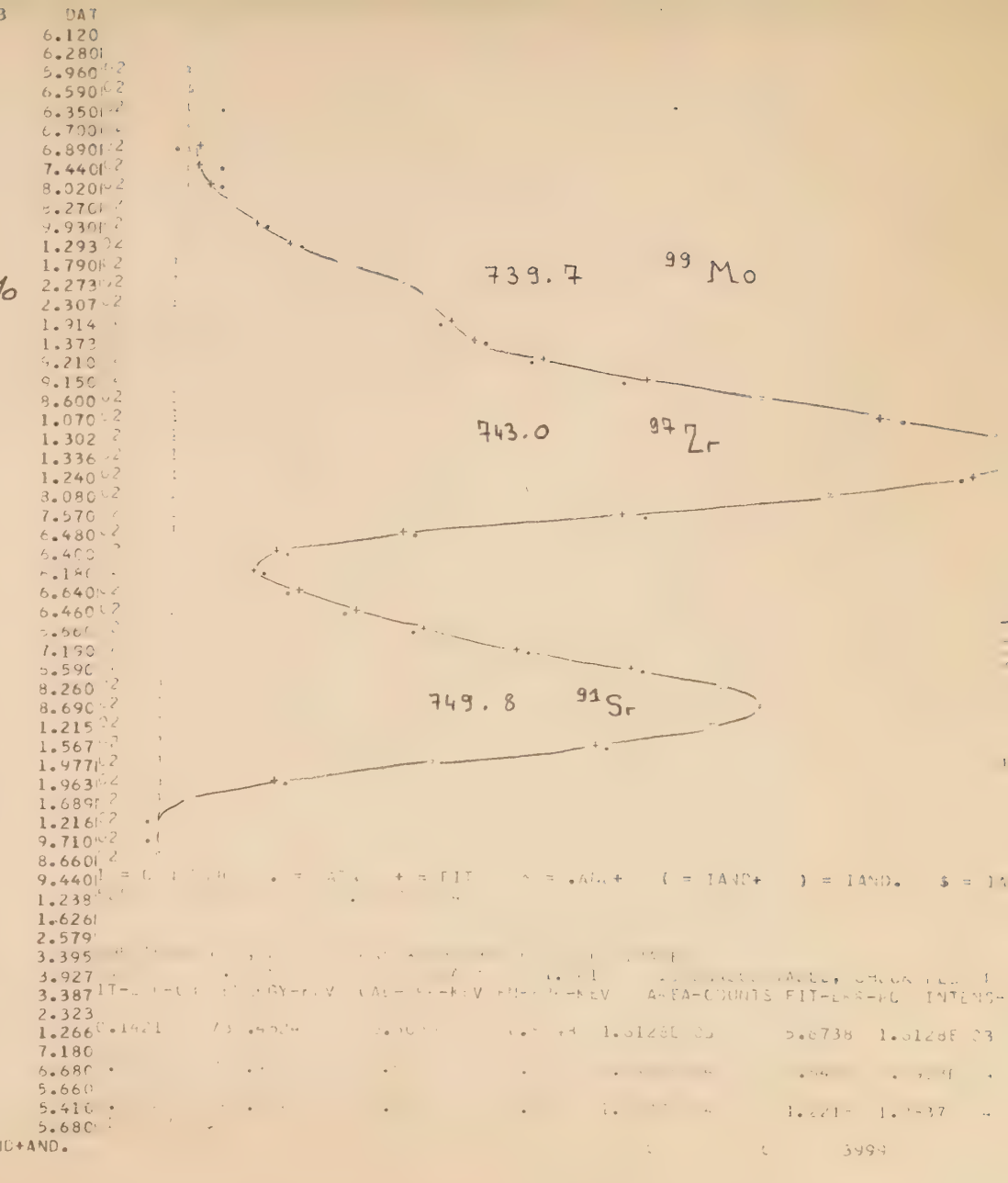


Fig 19

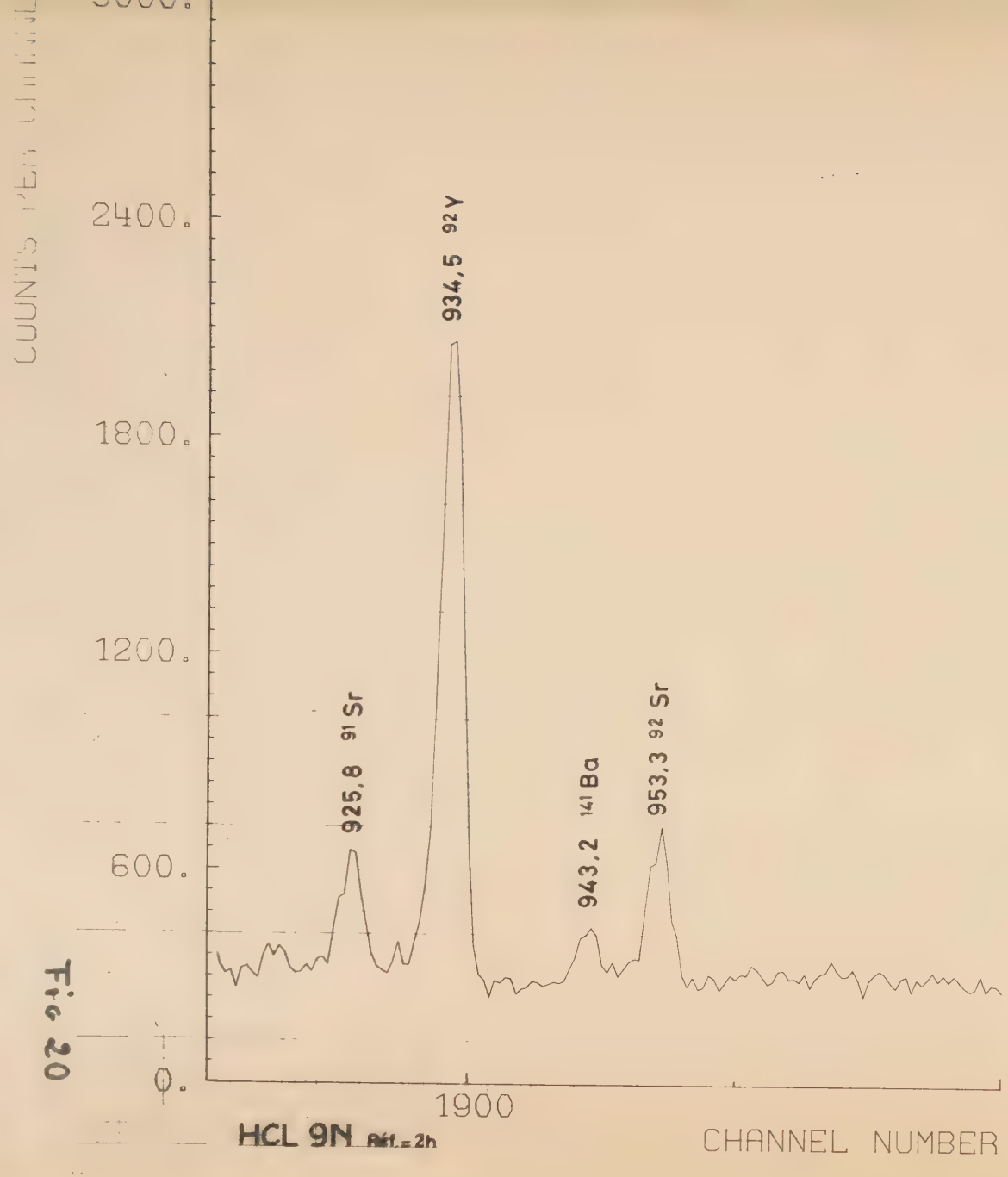
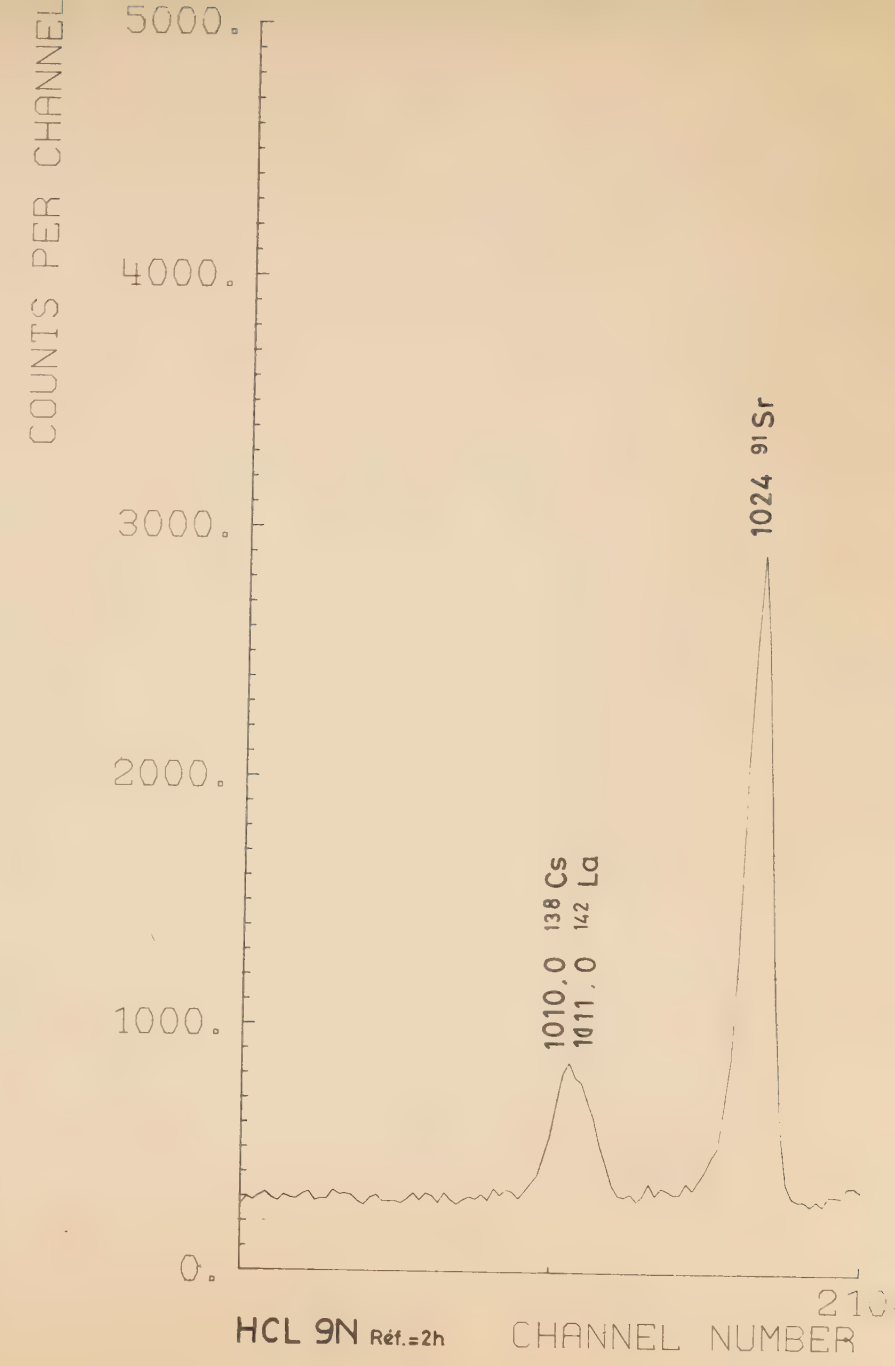
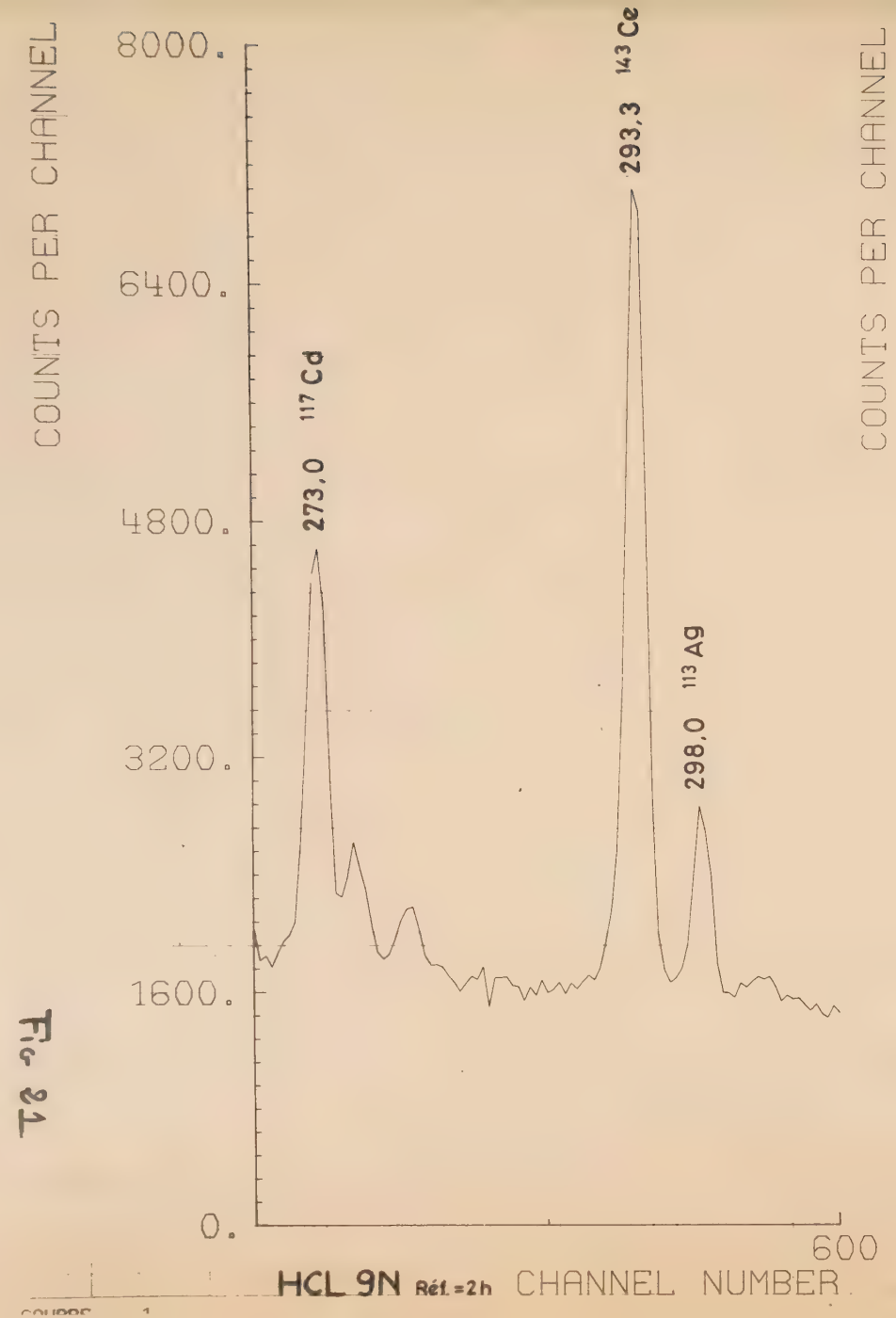

2400.
1800.
1200.
600.
0.
925,8 91 Sr
934,5 92 Y
943,2 141 Ba
953,3 92 Sr
1900
HCL 9N Réf.=2h
CHANNEL NUMBER

Fig 20


COUNTS PER CHANNEL
5000.
4000.
3000.
2000.
1000.
0.
1024 91 Sr
1010,0 138 Cs
1011,0 142 La
HCL 9N Réf.=2h
CHANNEL NUMBER


COUNTS PER CHANNEL
8000.
6400.
4800.
3200.
1600.
0.
273,0 117 Cd
293,3 143 Ce
298,0 113 Ag
600
HCL 9N Réf. =2h CHANNEL NUMBER

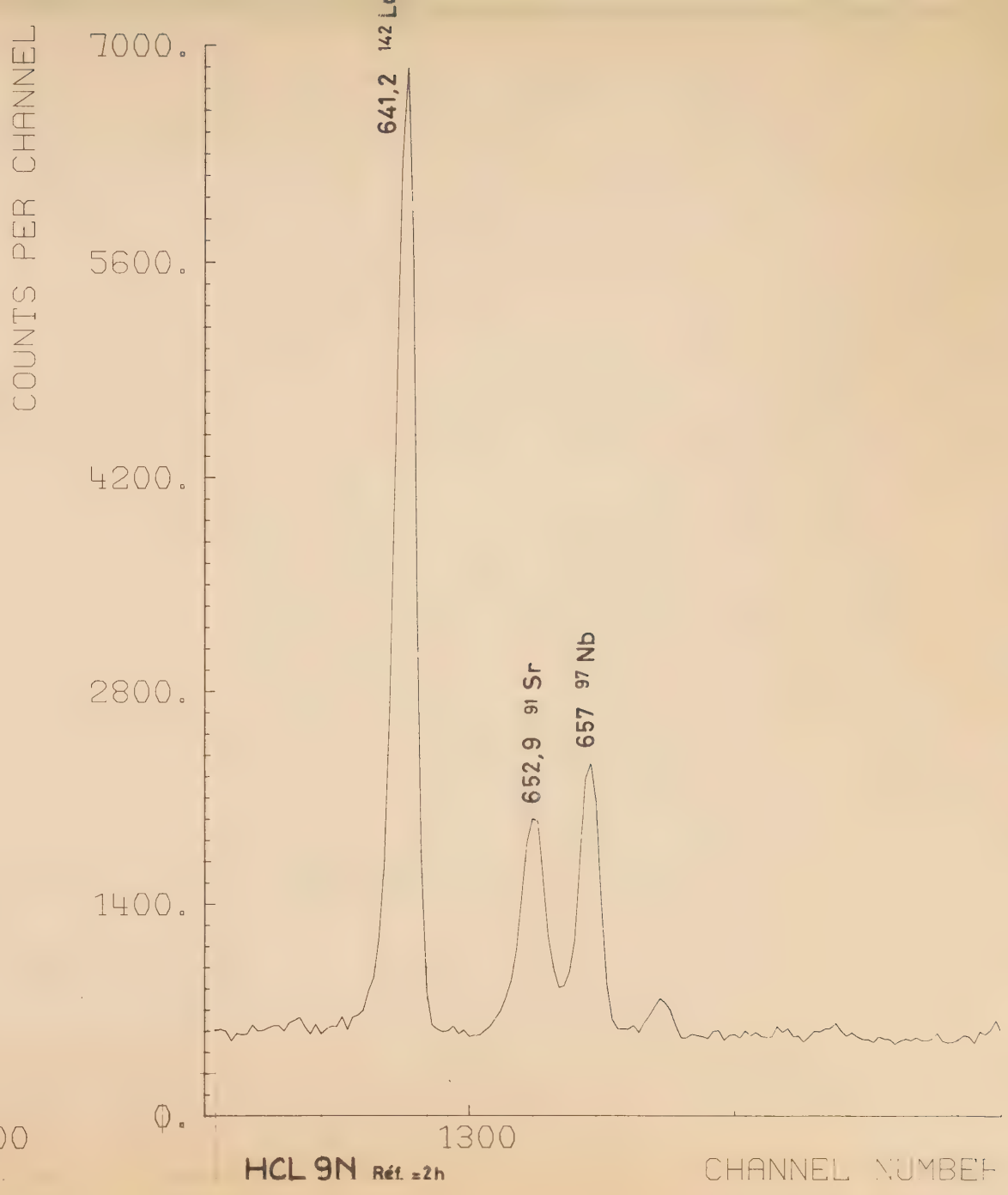

COUNTS PER CHANNEL
7000.
5600.
4200.
2800.
1400.
0.
641,2 142 La
652,9 91 Sr
657 97 Nb
1300
HCL 9N Réf. =2h
CHANNEL NUMBER

Fig 24

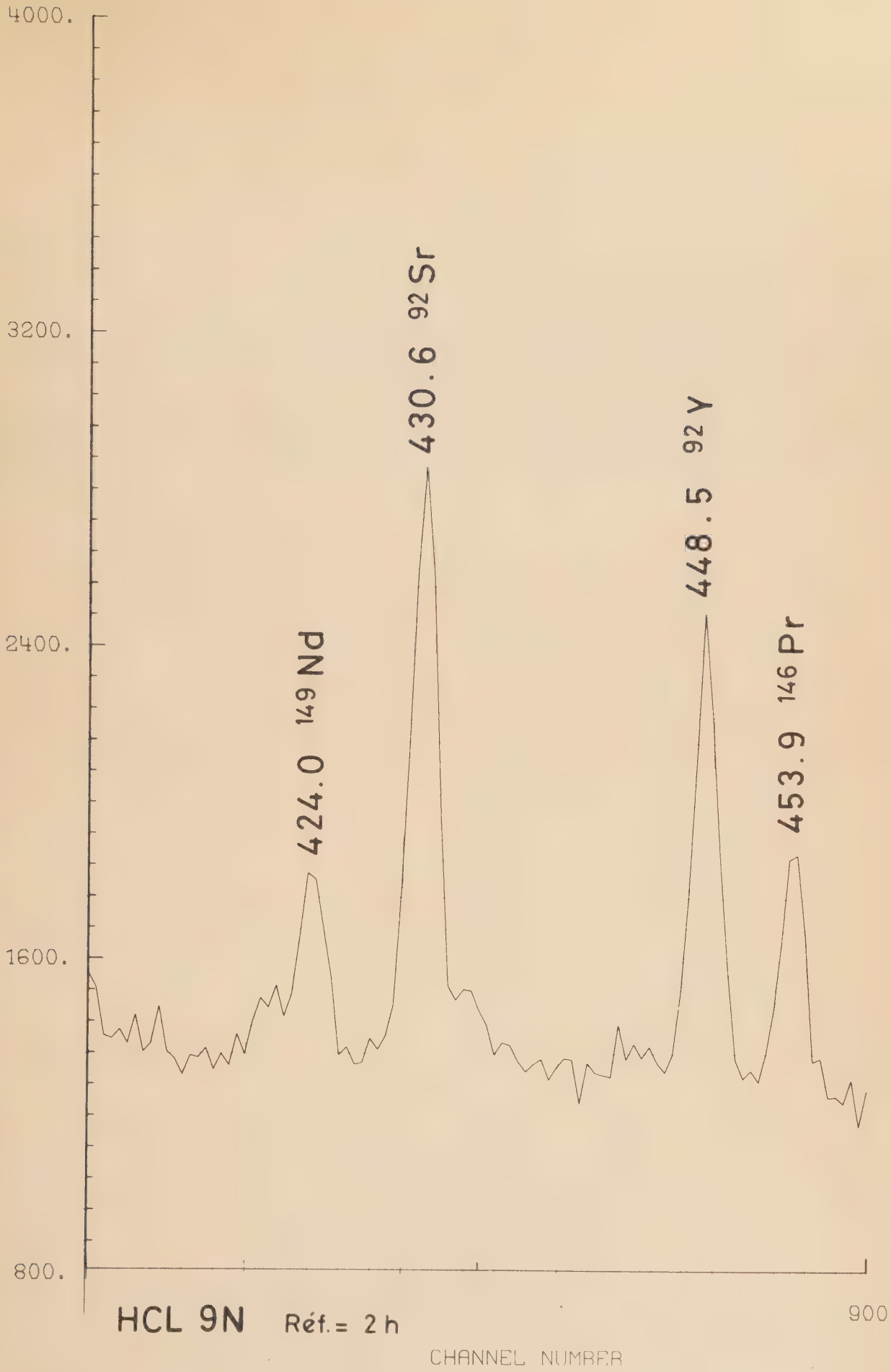
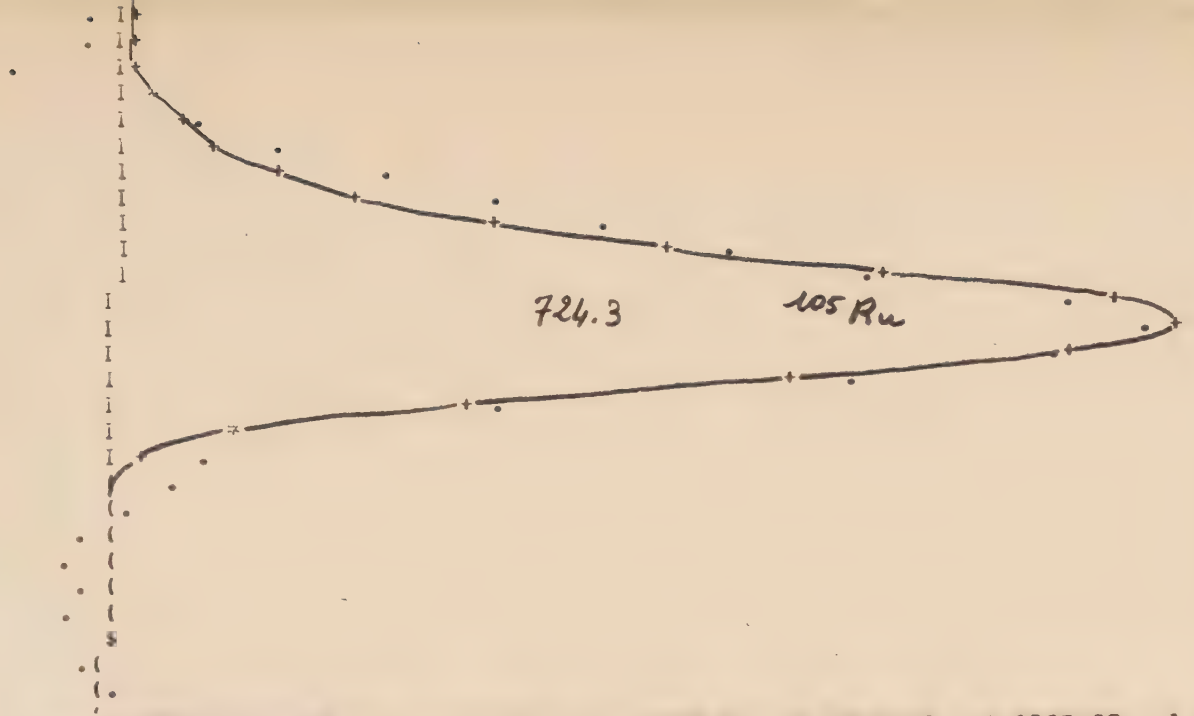

4000.
3200.
2400.
1600.
800.
424.0 149Nd
430.6 92Sr
448.5 92Y
453.9 146Pr
HCL 9N Réf.= 2 h
900
CHANNEL NUMBER

Fig 22

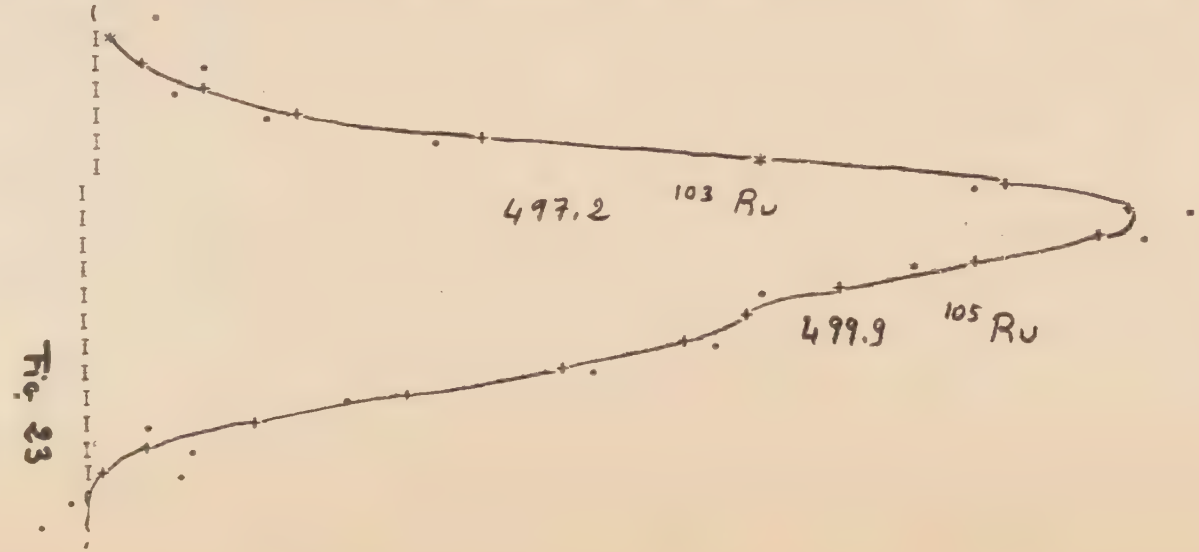


RUTHENIUM

6.360E 02	6.712E 02
6.380E 02	6.749E 02
5.620E 02	6.820E 02
6.890E 02	6.944E 02
7.380E 02	7.161E 02
8.220E 02	7.531E 02
9.620E 02	8.159E 02
1.101E 03	9.220E 02
1.299E 03	1.101E 03
1.533E 03	1.402E 03
1.856E 03	1.908E 03
2.496E 03	2.625E 03
2.758E 03	2.905E 03
2.429E 03	2.472E 03
1.813E 03	1.692E 03
1.109E 03	1.071E 03
7.750E 02	7.689E 02
7.420E 02	6.715E 02
7.070E 02	6.495E 02
6.660E 02	6.453E 02
6.260E 02	6.440E 02
6.090E 02	6.430E 02
6.170E 02	6.420E 02
6.080E 02	6.409E 02
6.470E 02	6.399E 02
6.230E 02	6.389E 02
6.430E 02	6.379E 02

-6.685E-04 3.567E-04 -2.997E 01 -1.055E-04 -1.156E-02 -4.852E-05 -1.278E-02

YMIN= 2.480E 02 IIIIIIIII SEMILOGARITHMIC SCALE IIIIIIIII YMAX= 1.058E 03



DATA	FIT
2.940E 02	2.727E 02
2.780E 02	2.770E 02
3.060E 02	2.864E 02
2.980E 02	3.063E 02
3.320E 02	3.487E 02
4.140E 02	4.386E 02
6.100E 02	6.193E 02
8.080E 02	8.393E 02
1.058E 03	9.734E 02
9.910E 02	9.407E 02
7.420E 02	7.961E 02
6.100E 02	6.699E 02
6.520E 02	6.035E 02
5.790E 02	5.551E 02
4.960E 02	4.817E 02
3.700E 02	3.938E 02
2.860E 02	3.242E 02
3.040E 02	2.862E 02
2.960E 02	2.713E 02
2.580E 02	2.670E 02
2.480E 02	2.660E 02
2.710E 02	2.657E 02

Fig. 23

à deux temps de refroidissement différents pour essayer de mettre en évidence l'influence ressentie sur le rendement (2 h et 4 h après la fin de l'irradiation). Les résultats exposés dans le chapitre V ne montrent pas de variation appréciable du rendement pour ces 2 temps. La référence était ^{127}Sb.

Le cas des cadmium pose un problème analogue (fig. 8 b). Dans la chaîne 115 et 117 il y a 2 isomères de cadmium avec une alimentation de l'une ou l'autre voie qui varie selon le genre de fission.

Nous avons attendu 4h après la fin de l'irradiation pour extraire les cadmium des autres produits de fission, ceci pour permettre aux précurseurs de décroître complètement.

Les temps d'irradiation étant égaux ou supérieurs à 4 heures, nous pouvons considérer que ce que nous calculons est le rendement cumulatif au niveau du ^{115}Cd f et du ^{117}Cd f. Ces calculs ont été faits par rapports au ^{140}Ba qui se trouvait dans la fraction d'où a été extrait le cadmium.

Dans le cas de cette séparation le rendement chimique du cadmium introduit une erreur supplémentaire, ce qui diminue la précision.

La période du ^{115}Cd isomère (45 jours) et la faible intensité de sa raie gamma ne nous ont pas permis de mesurer son rendement.

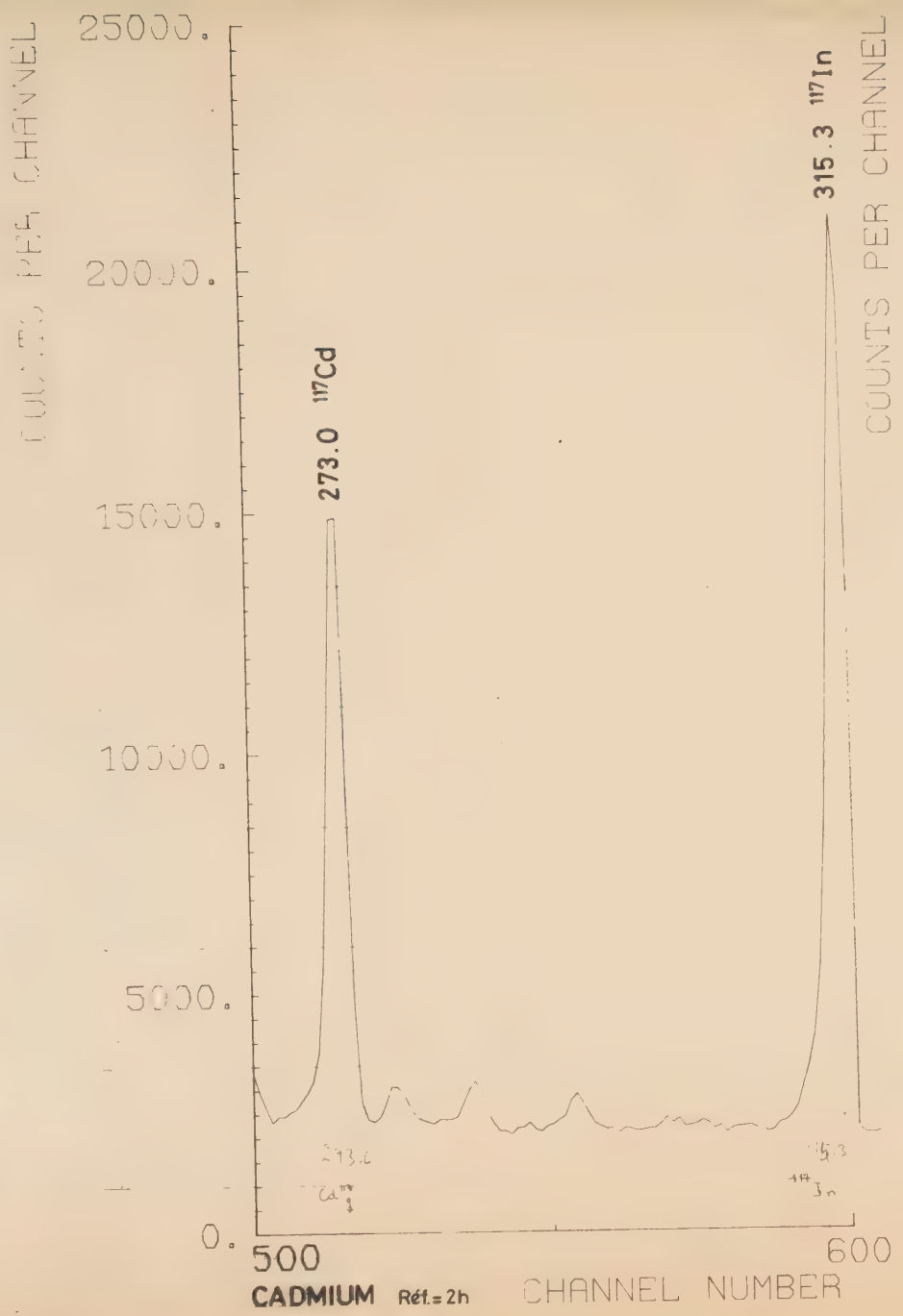
Pour le ^{117}Cd nous avons pu mesurer le rendement cumulatif au niveau de l'isomère.

Les figures 24 et 25 représentent les pics gamma du ^{115}Cd et des deux ^{117}Cd : le fondamental calculé sur le 273.3 keV et l'isomère calculé sur le 1234.0 keV. Quelques mesures ont également été faites sur le 1229.5 du ^{118}Cd.

Les étains sont présents dans la fraction cadmium, aussi avons-nous fait une mesure relative de leurs rendements de fission par rapport à l'un d'entre eux .

C'est ^{127}Sn de 2,12 h qui a été pris comme référence.

Là aussi nous ne pouvons avoir qu'une valeur indicative du rendement au niveau de ^{128}Sn de 1 heure (fig. 26).


COUNTS PER CHANNEL
25000.
20000.
15000.
10000.
5000.
0.
273.0 117Cd
315.3 117In
500
600
CADMIUM Réf.= 2h
CHANNEL NUMBER

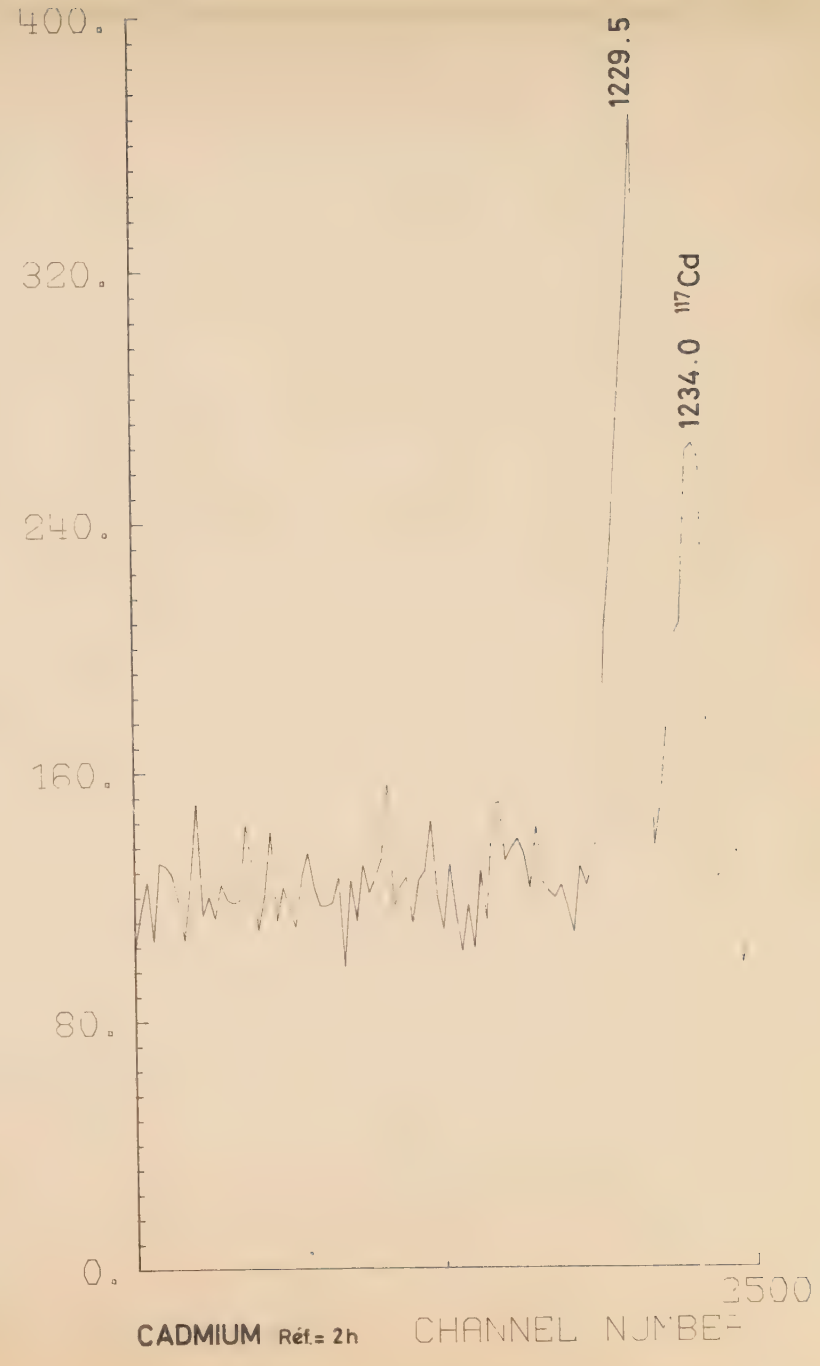

400.
320.
240.
160.
80.
0.
1229.5
1234.0 117Cd
2500
CADMIUM Réf.= 2h
CHANNEL NUMBE-

Fig 24

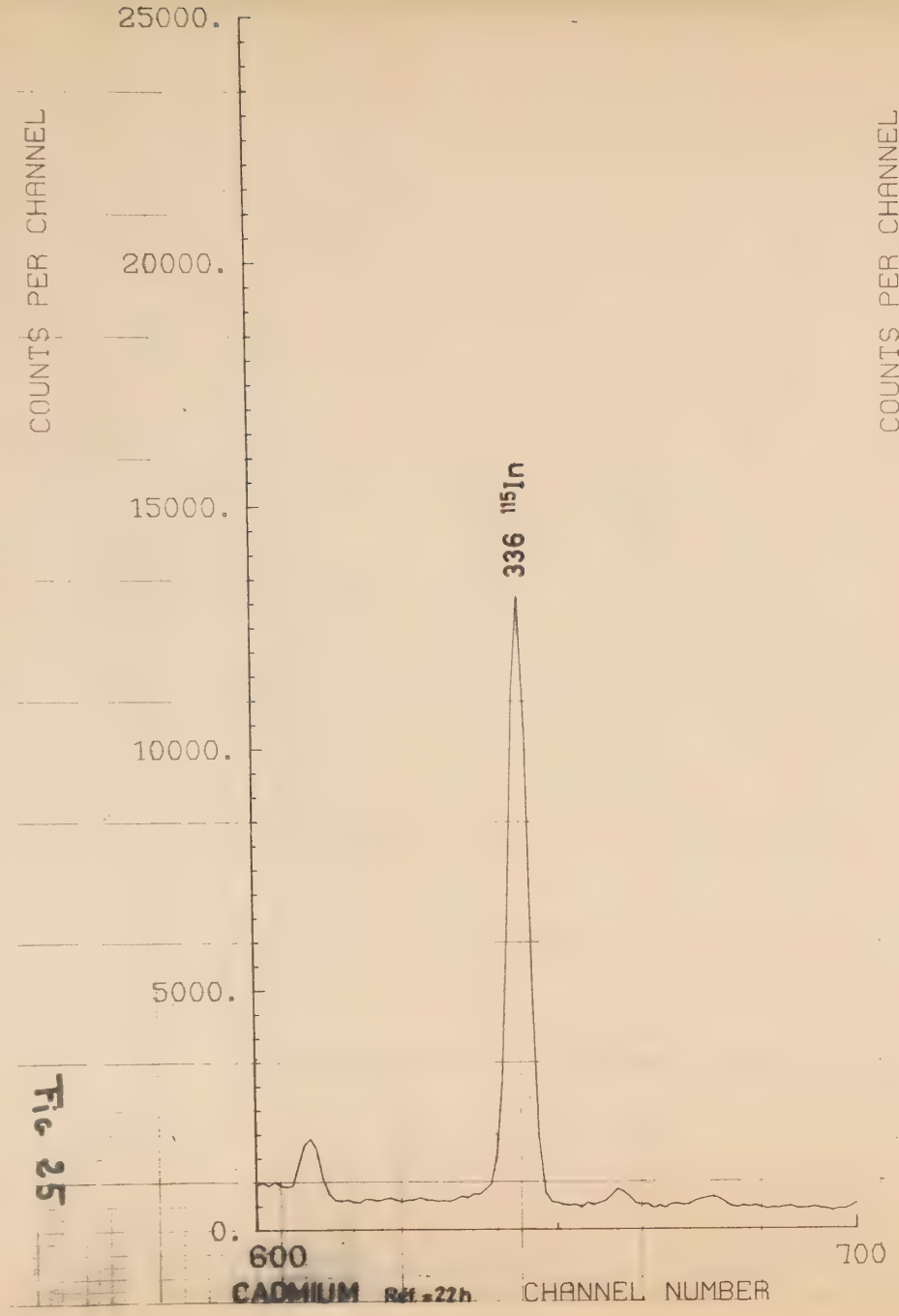
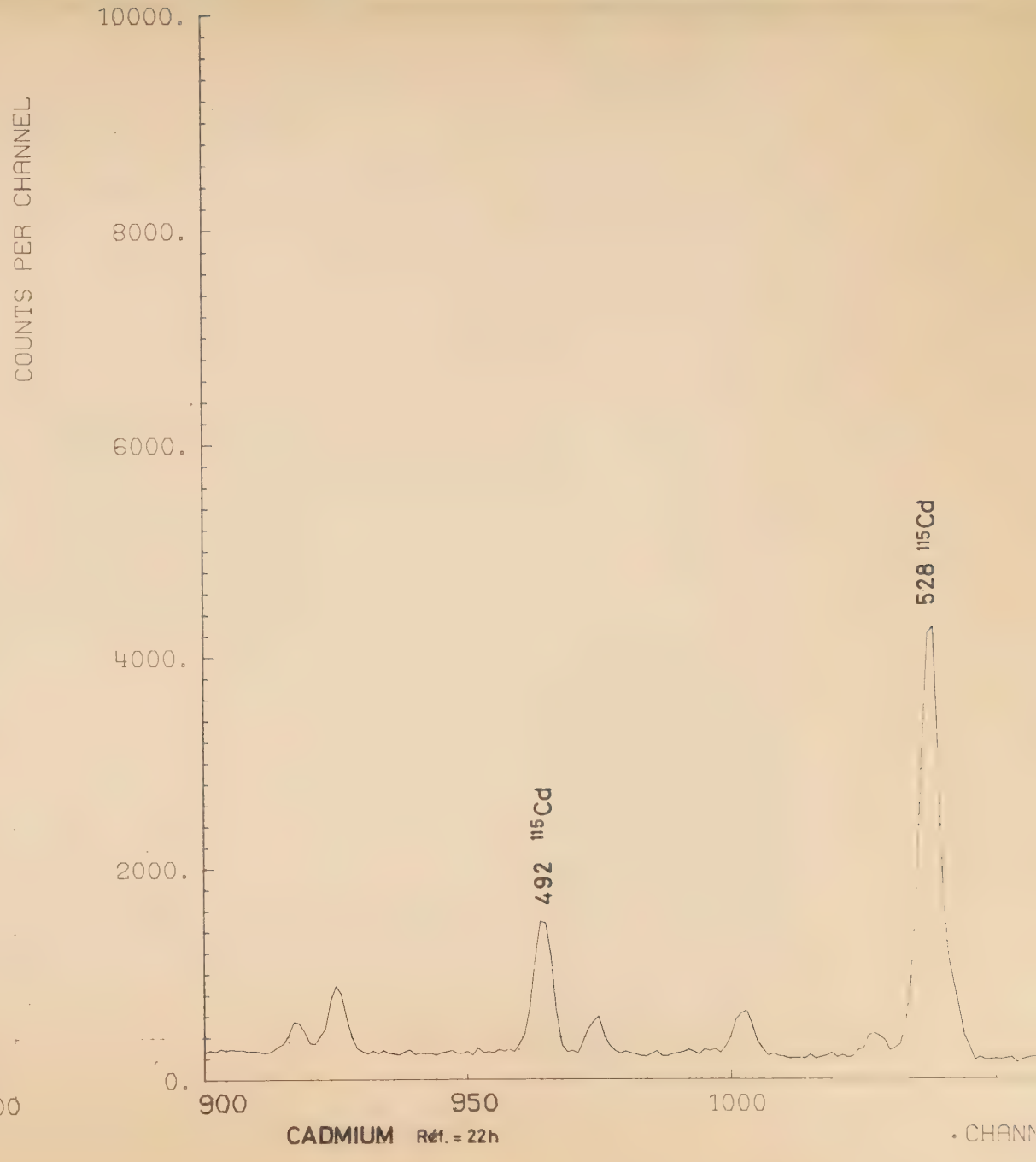
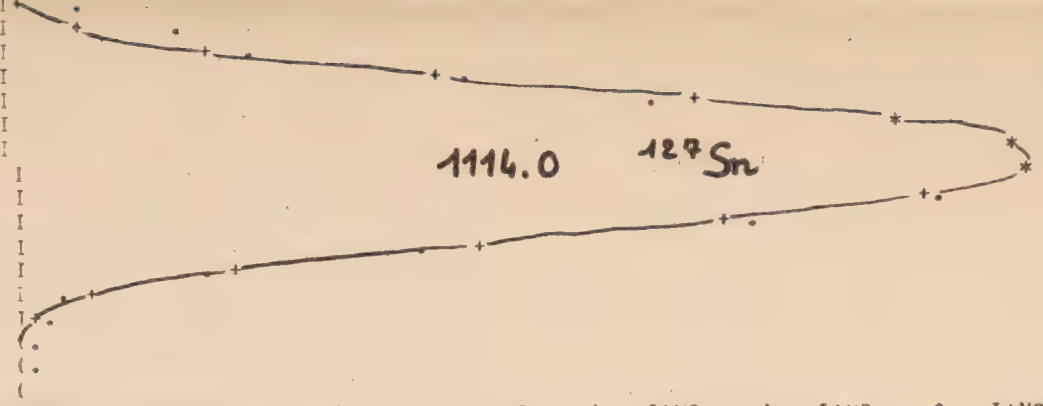

25000.
20000.
15000.
10000.
5000.
0.
COUNTS PER CHANNEL
336 115In
600
700
CADMIUM Réf. = 22h
CHANNEL NUMBER

Fig 25


10000.
8000.
6000.
4000.
2000.
0.
COUNTS PER CHANNEL
492 115Cd
528 115Cd
900
950
1000
CADMIUM Réf. = 22h
CHANN



2239	1.1	1.12E 02				1.570E 02	1.268E 02
2240	2.4	1.12E 02				1.800E 02	1.646E 02
2241	1.1	1.12E 02				2.700E 02	2.572E 02
2242	0.8	1.12E 02				3.920E 02	4.245E 02
2243	-1.6	1.12E 02				6.330E 02	6.358E 02
2244	-0.1	1.13E 02				7.840E 02	7.961E 02
2245	-0.4	1.13E 02				8.230E 02	8.080E 02
2246	0.5	1.13E 02				6.870E 02	6.637E 02
2247	0.9	1.13E 02				4.740E 02	4.529E 02
2248	1.0	1.13E 02				2.490E 02	2.765E 02
2249	-1.7	1.13E 02				1.650E 02	1.745E 02
2250	-0.7	1.13E 02				1.250E 02	1.314E 02
2251	-0.6	1.14E 02				1.220E 02	1.177E 02
2252	0.4	1.14E 02				1.170E 02	1.145E 02
2253	0.2	1.14E 02				1.170E 02	1.141E 02
2254	0.3	1.14E 02				1.040E 02	1.141E 02
2255	-1.0	1.14E 02					

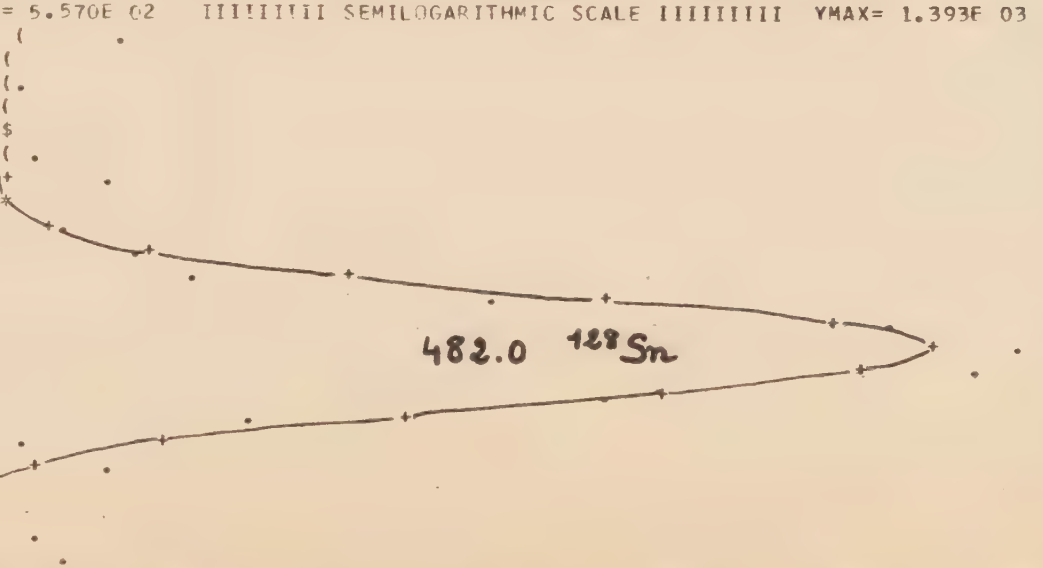
SYMBOLS I = CONTINUUM . = DATA + = FIT * = .AND+ (= IAND+) = IAND. $ = IAND+AND.

SUMDATA= 3.59208E 03 SUMCALC= 3.56716E 03

FITTING INTERVAL = 934 (947) 956 PEAK CHANNELS = 947

LINEAR LSQ PARAM. =	CHISQUARE	CONT.CONST.	CONT.SLOPE	CONT.PARAB.	PEAK HEIGHTS	
	8.500E 01	5.362E 02	8.394E-01	6.293E-01	7.619E 02	
FITTING PARAMETERS =	CONT.CONST.	CONT.SLOPE	CONT.PARAB.	PEAK HEIGHT	PEAK CENTR.	PEAK HEIGHT PEAK CENTR.
INITIAL GUESSES =	5.362E 02	8.394E-01	0.0	7.619E 02	9.470E 02	
DIAGONAL OF MATRIX =	1.000E 00	1.000E 00	0.0	1.000E 00	1.000E 00	
INITIAL F OR CHISQR=	1.540E 02					
INITIAL GRADIENT =	-2.306E 00	1.310E 01	-2.192E 02	-3.414E-02	-6.485E 01	
FINAL F OR CHISQR =	9.31683E 01+OR-	3.05176E-05				
FINAL PARAMETERS =	5.722E 02	-1.595E 00	0.0	7.115E 02	9.471E 02	
FINAL GRADIENT =	8.407E-04	-5.725E-03	-3.919E 01	-5.026E-05	-2.208E-01	

ETAINS.



CHAN.	DEV.	CONTINUUM	YMIN= 5.570E 02 IIIIIIIII SEMILOGARITHMIC SCALE IIIIIIIII YMAX= 1.393E 03	DATA	FIT
934	2.1	5.93E 02		6.450E 02	5.929E 02
935	-1.2	5.91E 02		5.620E 02	5.913E 02
936	0.2	5.90E 02		5.940E 02	5.897E 02
937	-0.3	5.88E 02		5.800E 02	5.881E 02
938	0.1	5.87E 02		5.890E 02	5.865E 02
939	0.6	5.85E 02		6.000E 02	5.851E 02
940	2.1	5.83E 02		6.370E 02	5.846E 02
941	0.1	5.82E 02		5.900E 02	5.882E 02
942	0.3	5.80E 02		6.150E 02	6.066E 02
943	-0.3	5.79E 02		6.550E 02	6.627E 02
944	-3.6	5.77E 02		6.900E 02	7.857E 02
945	-3.0	5.75E 02		8.880E 02	9.784E 02
946	1.6	5.74E 02		1.236E 03	1.180E 03
947	3.0	5.72E 02		1.393E 03	1.282E 03
948	3.3	5.71E 02		1.338E 03	1.218E 03
949	-1.7	5.69E 02		9.760E 02	1.029E 03
950	-3.6	5.67E 02		7.260E 02	8.219E 02
951	-3.4	5.66E 02		5.930E 02	6.755E 02
952	1.6	5.64E 02		6.420E 02	6.010E 02
953	-0.1	5.63E 02		5.710E 02	5.722E 02
954	-0.3	5.61E 02		5.570E 02	5.630E 02
955	1.7	5.59E 02		6.020E 02	5.597E 02
956	2.3	5.58E 02		6.140E 02	5.578E 02

SYMBOLS I = CONTINUUM . = DATA + = FIT * = .AND+ (= IAND+) = IAND. $ = IAND+AND.

SUMDATA= 3.65989E 03 SUMCALC= 3.56496E 03

Fig 26

2 - Calcul :

La méthode consiste donc à comparer la surface d'un pic gamma d'un isotope de rendement inconnu à celle d'un isotope de référence.
Soit la chaîne isobarique suivante :

$$^{140}Xe \xrightarrow{} ^{140}Cs \xrightarrow{} ^{140}Ba \xrightarrow{} ^{140}La \xrightarrow{} ^{140}Ce$$

13 s 64 s 12,8 j 40 h stable

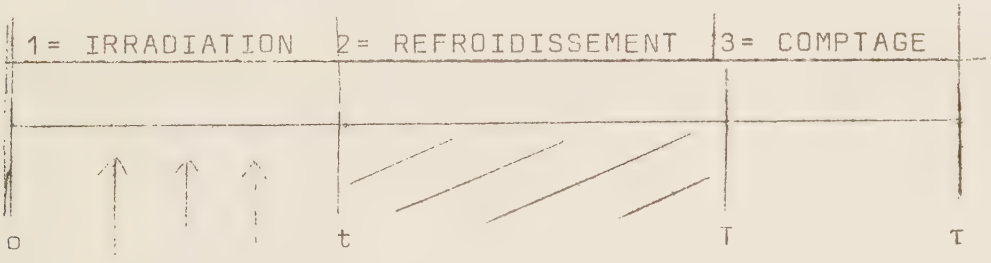
Si Yc_{Ba} est le rendement cumulatif au niveau du baryum

λBa la constante radioactive du baryum,

et puisque les périodes du cesium et de ses précurseurs sont négligeables devant celle du Ba et devant les temps d'irradiation, nous pouvons écrire :

$$\frac{dNBa}{dt} = Yc_{Ba} \; N_f \; \phi \; \sigma_f - \lambda \; Ba \; N_{Ba}$$

ceci correspond à la formation du baryum 140 durant le temps d'irradiation. Pour obtenir le nombre total de noyaux de baryum 140 formé, et de là calculer son rendement de fission, nous devons étudier son évolution du début de l'irradiation à la fin du comptage.



Après résolution de l'équation sans second membre, puis méthode de variation de la constante nous obtenons à la fin du temps d'irradiation, en admettant qu'à t = o

$N_{Ba} = o =$

$$N1_{Ba} = \frac{Y_{cBa} \; N_f \; \phi\sigma f}{\lambda \; Ba} \; (1 - e - \lambda^t)$$

Durant le temps de refroidissement il n'y a plus d'alimentation par fission, mais uniquement décroissance du baryum, ses précurseurs ayant décru .

$$\frac{d N_{Ba}}{dt} = - \lambda_{Ba} N_{Ba}$$

ce qui donne au temps T = $N_{Ba} = N^{o}_{Ba}\, e^{-\lambda_{Ba} T}$

$N^{o}Ba = N1_{Ba}$ nombre de noyauxde baryum 140 formés à la fin de l'irradiation.

Donc $N2_{Ba} = N1_{Ba}\, e^{-\lambda Ba\, T} = \frac{Yc_{Ba}\, Nf\, \phi\, \sigma f}{\lambda\, Ba} (1-e^{-\lambda Ba\, t}) e^{-\lambda_{Ba} T}$

Pendant le temps de comptage nous mesurons l'activité de ces noyaux de T à T + τ:

$$A_{Ba} = \int_{T}^{T+\tau} \lambda_{Ba} N_{2Ba}\, dt = \int_{T}^{T+\tau} \lambda_{Ba} N1_{Ba}\, e^{-\lambda Ba\, T}\, dt$$

$$A_{Ba} = Yc_{Ba}\, Nf\, \phi \sigma f\, (1-e^{-\lambda Ba\, t}) \int_{T}^{T+\tau} e^{-\lambda Ba\, t}\, dt$$

$$A_{Ba} = \frac{Yc_{Ba}\, Nf\, \sigma f\, (1-e^{-\lambda\, Ba\, t})}{\lambda\, Ba} \{e^{-\lambda T} - e^{-\lambda (T+\tau)}\}$$

$$\boxed{A_{Ba} = \frac{Yc_{Ba}\, Nf \phi\, \sigma f}{\lambda Ba} (1-e^{-\lambda_{Ba} t})\, e^{-\lambda T}\, (1-e^{-\lambda \tau})}$$

t = temps d'irradiation

T = temps de refroidissement

τ = temps de comptage

$$A_{Ba} = \lambda_{Ba}\, N_{Ba} = \frac{\lambda_{Ba}\, S_{Ba}}{\varepsilon\, \gamma}$$ où

(S = surface de la raie gamma
(ε = efficacité du détecteur
(γ = intensité absolue de la raie gamma

Si nous faisons le même comptage pour une deuxième chaîne isobarique X et que nous comparons l'activité à celle du ^{140}baryum, nous pouvons écrire :

$$\frac{A_x}{A_{Ba}} = \frac{Yc_x}{Yc_{Ba}} \frac{(1-e^{-\lambda x t})}{(1-e^{-\lambda Ba t})} \frac{e^{-\lambda_x T}}{e^{-\lambda_{Ba} T}} \frac{(1-e^{-\lambda_x \tau})}{(1-e^{-\lambda_{Ba} \tau})}$$

→
$$Yc_x = Yc_{Ba} \frac{S_x}{S_{Ba}} \frac{\varepsilon_{Ba}\,\gamma_{Ba}}{\varepsilon_x\,\gamma_x} \frac{(1-e^{-\lambda_{Ba} t})\, e^{-\lambda Ba T}\, (1-e^{-\lambda_{Ba} \tau})}{(1-e^{-\lambda_x t})\, e^{-\lambda x T}\, (1-e^{-\lambda x \tau})}$$

Il nous faut connaître :

- Les surfaces respectives des deux raies gamma choisies
- Les constantes radioactives respectives
- Les intensités absolues et efficacités relatives pour les énergies des raies gamma considérées.
- Les temps d'irradiation, de refroidissement, de comptage.

Ce calcul est valable pour les cas simples, où la période des précurseurs est très courte devant celle de l'isobare dont on mesure le rendement cumulatif.
Les différents calculs qui nous servent pour les mesures de rendement dans le cas où l'on doit tenir compte des précurseurs ou bien dans le cas de séparations chimiques, donc de coupures de chaînes, sont résumés dans la thèse d'Annie FERRIEU (Université de Grenoble Octobre 1972).
Des programmes FORTRAN écrits au laboratoire nous permettent de réaliser ces calculs rapidement et de connaître le rendement cumulatif au niveau de l'élément choisi.

5ème CHAPITRE

RESULTATS à 14 MeV

1 - Rappel des résultats antérieurs .

Les résultats des premiers travaux sur la fission du thorium 232 à 14 MeV datent de 1964 où BROOM (14) publia les valeurs des rendements de 16 masses et LYLE (15) ceux d'une dizaine de masses.
En 1966 Ganapathy & Kuroda (1) isolaient les ^{99}Mo ; 103, 105, 106 Ru, ^{109}Pd, 111, 113, 115 Ag dont ils mesuraient les rendements, mettant ainsi en évidence un troisième pic dû à la fission symétrique.
TIM Mo & M.N. RAO (2) confirmaient ces résultats en mesurant en 1967, les rendements des masses 115 127. Ils séparaient chimiquement les ^{115}Cd, 121, 125 Sn, ^{127} Sb, ^{129m}, ^{132}Te.

Dans le même laboratoire THEIN et al. (2) ont, par la suite, mesuré les rendements des fragments lourds.
Plus récemment des mesures de rendement, pour les masses légères 66, 67, 72 et les masses 159, 161, 166, 169 ont été publiées par NETHAWAY et al. (4) et les masses 73, 77, 78, 79, 81 par SWINDLE et al. (5).
Il en résulte une idée approximative de la courbe de distribution en masses pour la fission du thorium 232 à 14 MeV, et la mise en évidence d'un troisième pic dans la zone symétrique.

2 - Cas des chaînes étudiées :

Nous avons étudié en tout une trentaine de chaînes isobariques. Toutes les valeurs de rendements cumulatifs obtenues sont rassemblées dans les tableaux 5 à 8. Elles sont classées par mode de traitement qu'a subi la cible. Ainsi le tableau 5 rassemble les résultats obtenus après séparation des alcalins, alcalino-terreux, terres rares. le tableau 6 ceux obtenus après analyse sans séparation chimique. La dernière colonne rassemble la

Hcl 12N. Alcalins - Alcalino terreux - Terres Rares -

Date			28-11-72			11-12-72		21-12-72		21-2-73			MOYENNES	
Refroidissement			3 j 1/2	1 H 1/2	3 H	10 H	3 j 1/2	2 H	1 H 1/2	3 H	2 H	19 H	8 j	ref ^{91}Sr	ref ^{140}Ba
91	Sr	749.8 KeV		6.42	6.15	5.73		5.72*	5.72*	5.72*	5.72*	5.51		5.72	
		1024.3		5.72*	5.72*	5.35		6.31	5.74	5.53	5.55	5.37			5.36
	Y	555.6		6.46	6.25				6.82	6.08				6.40 ± 0.37	
92	Sr	1383.9		5.56	5.18				5.22	4.86				5.14 ± 0.26	
	Y	934.5		5.92	5.67			5.72	5.83	5.40	5.68			5.70 ± 0.26	
93	Y	947.0			5.51			5.06							
140	Ba	537.3	5.9*			5.9*	5.9*				5.9*	5.9*			5.9**
141	Ce	145.4	5.93				6.65					5.45			6.01 ± 0.49
142	La	641.2		5.35	5.87			5.16	4.85	4.94	4.63			5.13 ± 0.40	
143	Ce	293.3	4.47			4.99	3.65		4.67	4.54	4.63	4.82	5.16	4.61 ± 0.06	4.62 ± 0.42
147	Nd	531.0	2.10				1.83					1.64			1.86 ± 0.18
149	Nd	424.0			1.16			0.90						1.0 ± 0.1	
151	Pm	339.9	1.10												

** rendement pris comme référence

Tableau 5

14 MeV — Sans séparation chimique — Non destructif

	21-11-72		28-11-72		11-12-72			15-12-72				4-1-73					10-1-73		17-1-73		24-1-73		28-3-73			MOYENNES		Moyennes de nos manip. faisant la thèse
	22 h	8 j	18 h	3 j 20 h	18 h	2 j	5 j 1/2	19 h	31 h	12 j	19 j	3 h	10 h	17 h	25 h	7 j	24 h	9 j	28 h	20 j	2 j	12 j	2 j 1/2	6 j		Act. ^{140}Ba	Ref ^{91}Sr	
^{91}Sr 749.8					5.72																							
1024.3	5.72							6.19	5.68			5.72	5.72	5.72	6.25		5.72		5.73				5.93			5.96 ± 0.23		5.49 ± 0.30
^{91}Y 555.6								6.32	5.55						6.26		5.20		5.67		5.89		5.65					
^{92}Y 934.5			4.13		4.33			5.30	5.47			5.28	5.06	5.11	5.49				5.20							5.12 ± 0.50		
^{93}Y 947.0	5.41																		4.95									
^{95}Zr 756.7		4.00					4.50			4.49	4.71					4.55		4.46		4.47		4.63		4.22	4.49	4.45 ± 0.19		5.14 ± 0.45
^{97}Zr 743 ℓ			3.09		2.90	2.76																						3.56 ± 0.39
^{99}Mo 739.7		1.75					1.91									1.99		1.77				2.19				1.92		2.07
^{103}Ru 497.2		1.09		1.22		1.07	1.14	1.08	1.20	1.23	1.15					1.10				1.20	1.16	1.10		1.16	1.15	1.15 ± 0.05		1.11 ± 0.12
^{105}Ru	1.68		1.61		1.60			1.05																				1.18
^{112}Ag 616.8			1.74		1.44	1.55		1.96	1.80						1.94		1.66									1.73 ± 0.18		1.68 ± 0.16
^{113}Ag 298.0												1.29	1.52	1.94														1.62 ± 0.15
^{115}Cd 527.8		1.21					1.47									1.45		1.58								1.43 ± 0.18		
^{127}Sb 473.0	1.66	1.10			1.15	1.08	0.98		0.97	1.18						1.09		1.06	1.08		0.99	1.22	0.98	1.12		1.08 ± 0.08		1.07 ± 0.10
^{129}Sb 812												0.467	0.452															
^{131}I 364.4	2.35	2.78	2.88	2.86		2.66	3.17	2.70	2.69	3.30	3.20				2.71	2.59		2.80	2.76	2.84	2.64	2.86	2.77	2.87	2.85	2.86 ± 0.19		
^{132}I 772.7			3.46		3.03	3.02	3.39			3.69				3.67	3.68	2.92		2.90	3.51		3.57	3.05	3.43	3.19		3.32		3.22
^{132}Te 228.2	3.64	3.26	3.54	3.54		3.51						3.56	3.63	3.68	3.91	3.46		3.54	3.80		3.88	3.75	3.44	3.33	3.30	3.56 ± 0.21		3.54 ± 0.30
^{133}I 529.9	4.56			5.30		4.66																						
^{135}I 1260.5	3.76		4.29					4.78	4.35				4.65	4.27	4.39				4.16									
^{140}Ba 537.3		5.9		5.9		5.9	5.9	5.9	5.9	5.9	5.9				5.9	5.9		5.9	5.9	5.9	5.9	5.9	5.9	5.9	5.9			
^{143}Ce 293.3	5.13	4.34	5.19	4.71			4.76	5.10	4.77				4.51	4.63	5.15		4.70		4.98				4.97	4.68				
^{147}Nd 531.0										1.32	1.85									1.76		1.28			1.55			
^{141}Ce 145.4							5.28			5.58					5.59	4.95		5.50		5.55		5.33						

22/2/73 Noodles → ^{95}Zr = 5.50 (TREF = 6 j)

15/5/73 Noodles → ^{95}Zr = 5.27 (TREF = 11 j)

moyenne des résultats obtenus par nous avant le début de cette thèse. Sur les tableaux 7 à 8 sont portés les résultats obtenus après séparation des ruthénium, des antimoines, des cadmium et des kryptons.
Sur le tableau 7, sont mentionnés quelques rendements calculés au niveau des étains 127 et 128, cela à titre indicatif uniquement. Toutes ces valeurs sont résumées dans le tableau 9 où sont portées des moyennes. L'erreur calculée est l'écart quadratique. La figure 27 représente la courbe de distribution des masses

- Les chaînes 85, 87, 88, 92, 95, 97, 117, 131, 133, 135, 142 et 143 n'ont pas été mesurées par les auteurs cités dans le tableau. Nous ne comparons pas nos valeurs.

- Les résultats pour les chaînes 91, 93, 99, 141, 147 sont en accord avec les mesures précédentes.

- La valeur du ^{103}Ru mésuré en "non destructif" est plus élevée que celles de GANAPATHY (1) et de GEVAERT (3). Aussi, trouvons-nous le rendement du ^{105}Ru bien plus faible que le ^{103}Ru, notre valeur étant cependant en accord avec celle de GANAPATHY. Nous ne pensons pas que la valeur plus élevée du ^{103}Ru soit due à une contimination en Ru naturel du nitrate de thorium utilisé. (^{104}Ru (n, 2n) ^{103}Ru).

- La masse 112 dont nous trouvons un rendement cumulatif très élevé sur ^{112}Ag, est, comme chez Gevaert sur ^{112}Pd, plus forte que les masses 113 et 115.
Les rendements pour les masses 113, 115, 117 sont plus élevés d'environ 20% que chez GANAPATHY et GEVAERT. THEIN a trouvé cependant en 1968 une valeur sur le ^{115}Cd qui semble être en accord avec la nôtre.
Nous ne possèdons pas d'explication de ce fait. Nous n'avons pas chercher à normaliser à 200 la somme des rendements car il serait nécessaire d'une part, d'interpoler trop de masses, et d'autre part, les masses 75 à 85 n'ont pas été mesurées dans le présent travail.

RUTHENIUM à 14 MeV

	10.1.73	17.1.73	24.1.73	12.2.73	14.2.73	Moyenne
103 37.2	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0 *
105 39.4	0.72	0.97	0.83	0.78	0.81	0.82 ± 0.08

* Ru^{103} pris comme référence
Ru^{103} en non destructif = 1.13 → $Ru^{105} = 0.94 \pm 0.09$

ANTIMOINES

	Séparation 4h après fin irradiation	Séparation 2h	Séparation 2h 1/4	Séparation 2h 1/2	Moyenne
	17.1.73	24.1.73	12.2.73	21.2.73	
27 473.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0 *
29 812	1.27	1.46	1.23	1.55	1.38 ± 0.13

* Sb^{127} pris comme référence
Sb^{127} en non destructif = 1.07 → $Sb^{129} = 1.48 \pm 0.14$

ETAINS

	15.12.72	21.12.72	10.1.73	Moyenne
127 114.3	1.0	1.0	1.0	1.0 *
128 482.0	0.859	1.000	0.826	0.895 ± 0.07

/ TABLEAU 7 /

CADMIUM — Référence ^{140}Ba : 5.9

	11-12-72	15.12.72	21.12.72	4-1-73	10.1	17.1	24-1-73	MOYENNE
115 Cd 527.8 keV	1.58 1.52 1.49	1.60	1.69	2.03 1.76	1.44	1.80	1.95 1.91	1.71 ± 0.18
In 336.2 keV		1.74		1.59	1.35	1.55	1.98	1.63
117 Cd_f 273.3 keV	1.30	1.63	1.82 1.89	1.57 1.54	1.28	1.40	1.82	1.65 ± 0.19
Cd_i 1234.0 keV		0.040				0.037		
118 In 1229.5 keV		0.49				0.36		

KRYPTONS — * Référence ^{87}Kr : 4.75 (16)

refroidissement	6/4/72		12-4-72		MOYENNE
	2 H	3 H 1/2	2 H	3 H 1/2	
^{87}Kr 402.7 keV	4.75	4.75	4.75	4.75	4.75 *
^{85}Kr 151.0 keV	4.40	4.43	4.46	4.40	4.42 ± 0.02
305.0 keV	4.18	4.34	4.28	4.22	4.25 ± 0.06
^{88}Kr 196.1 keV	4.65	4.69	4.73	4.68	4.69 ± 0.05

Tableau 8

14 MeV

Tableau 9

	GANAPATHY [1] 1966 THEIN [2] 1968	GEVAERT [3] 1968	NETAWAY 1969 [4]	SWINDLE 1971 [5]	Nos resultats
Ge 73				0.08 ± 0.002	
As 77				0,13 ± 0.02	
As 78				0,31 ± 0.05	
As 79				0.95 ± 0.15	
Se 81				1.21 ± 0.20	
Kr 85					4.33 ± 0.06
Kr 86					
Kr 87					4.75
Kr 88					4.69 ± 0.05
Br 91					5.72 ± 0.30
Y 91	5.94 ± 0.60				
Sr 92					5.14 ± 0.26
Y 92					5.70 ± 0.16
Y 93	5.76 ± 0.60		5.3 ± 0.5		5.43 ± 0.28
Zr 95					4.79 ± 0.32
Zr 97					3.56 ± 0.39
Mo 99	• 2.00 ± 0.10	2.00 ± 0.08		2.00 ± 0.1	2.01 ± 0.19
Ru 103	• 0.75 ± 0.13	0.83 ± 0.05			1.13 ± 0.08
Ru 105	0.92 ± 0.10	1.00 ± 0.09			0.94 ± 0.09
Pd 109	• 1.10 ± 0.10	1.28 ± 0.15			
Ag 111	• 1.50 ± 0.15	1.21 ± 0.08			
Ag 112					1.70 ± 0.17
Pd 112		1.32 ± 0.08			
Ag 113	• 1.20 ± 0.10	1.26 ± 0.08			1.62 ± 0.15
Cd 115 g	• 1.24 ± 0.20 1.5 ± 0.2	1.20 ± 0.10			1.57 ± 0.16
Cd 117 g					1.51 ± 0.17
Sn 121	1.0 ± 0.1	0.93 ± 0.10			
Sn 125 g	0.58 ± 0.1	0.52 ± 0.04			
Sn 127 g					
Sb 127	1.21 ± 0.1				1.07 ± 0.09

	GANAPATHY THEIN	GEVAERT	NETAWAY	SWINDLE	NOS RÉSULTATS
n 128					
b 129	^{129m}Te = 1.6 ± 0.1				1.48 ± 0.14
131					2.86 ± 0.19
e 132	2.2 ± 0.2				3.55 ± 0.25
132					3.27 ± 0.25
133					4.35 ± 030
135					4.27 ± 0.25
a 140			5.8 ± 0.2		5.9 *
e 141	5.78 ± 0.70				5.69 ± 0.50
a 142					5.13 ± 0.40
e 143	5.26 ± 0.50				4.61 ± 0.40
e 144	5.12 ± 1.54				
d 147	1.70 ± 0.12		1.81 ± 0.13		1.86 ± 0.18
d 149					1.0 ± 0.01
m 149	0.66 ± 0.07				
m 151	0.16 ± 0.03				
m 153	0.085 ± 0.010		0.086 ± 0.009		
Eu 156	0.036 ± 0.007				
Eu 157	0.012 ± 0.006				

* 5.9 valeur choisie comme référence

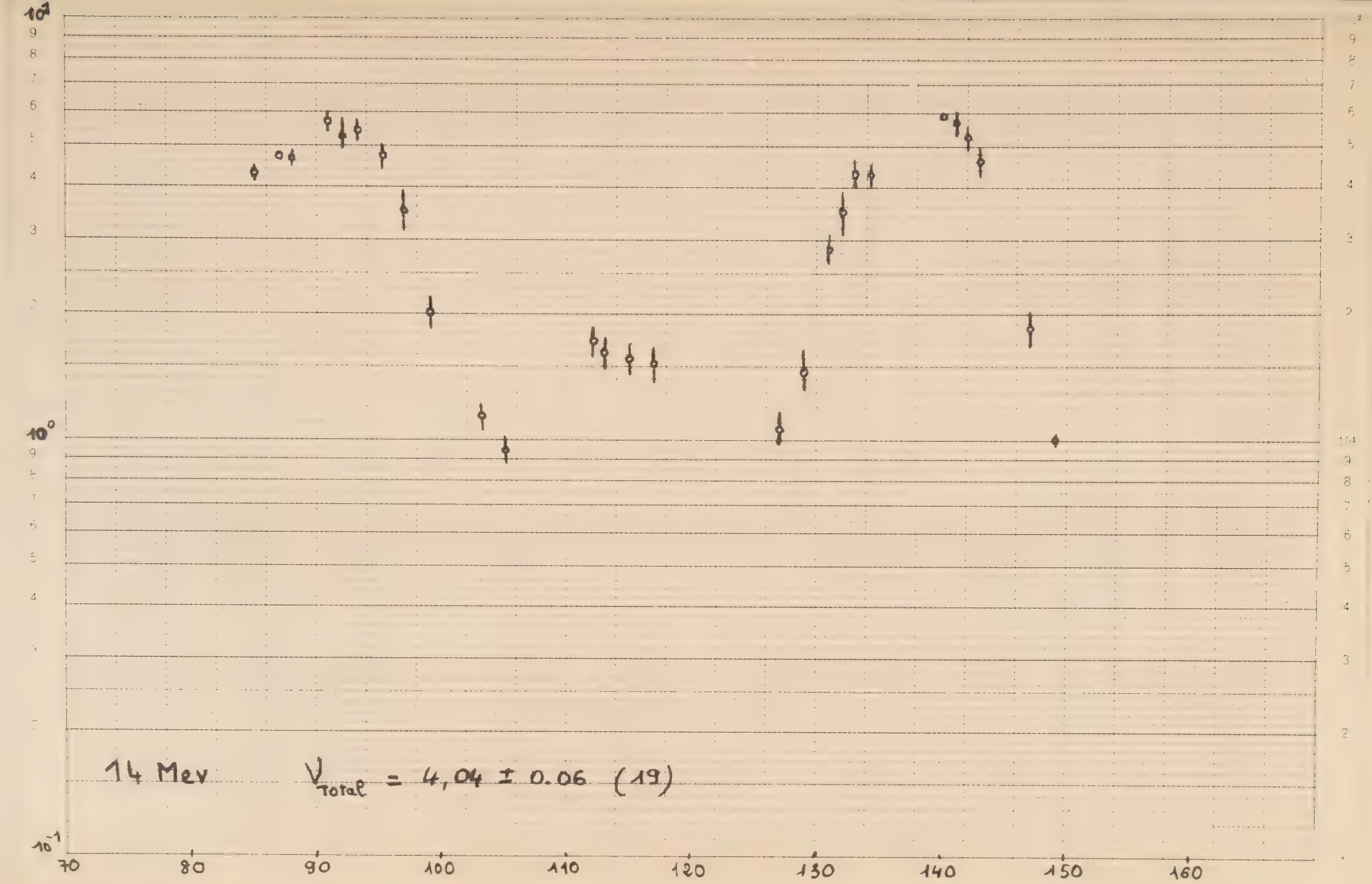


Fig. 27

Logar. Teilung / Division 1 - 100, Einheit / Unité 83,33 mm

Ed. Aerni-Leuch, Bern Nr. 527

6ème CHAPITRE

RESULTATS CONCERNANT LA FISSION AUX NEUTRONS DE REACTEURS

1 - Rappel des résultats antérieurs :

Très peu de résultats ont été publiés sur la fission par des neutrons de réacteurs. On trouve dans les compilations de CROALL (23), CROUCH (12) et de VON GUNTEN (11) la liste de tous ces travaux. Parmi les plus récents IYER et al. en 1962 (6) ont mesuré les rendements d'une trentaine d'isotopes relativement au Mo^{99}. Leurs résultats semblent indiquer la présence d'un 3° petit pic dans la région symétrique de la courbe de distribution de masses.

Les travaux de WYTTENBACH et al. (7) publiés en 1965 portent sur 11 éléments. La valeur du rendement pris comme référence est celle du Mo^{99} de IYER.

HARVEY et al. (9) ont publié en 1968 les rendements des ^{87}, ^{88}Kr relativement au ^{86}Kr, du ^{133}Xe relativement au ^{132}Xe, des Cs et Nd.

Ces valeurs sont obtenues par spectrométrie de masse. Neuf autres isotopes sont mesurés avec Ge/Li, par comparaison aux rendements de l'U 235 thermique.

Ces derniers travaux ne donnent aucune indication quant à l'existence de fission symétrique.

2 - Cas des chaînes étudiées :

Nous avons étudié 22 chaînes isobariques. Les valeurs des rendements cumulatifs obtenus sont rassemblées dans les tableaux 10, 11 et 12.

Comme à 14 MeV elles sont classées par mode de traitement de la cible, puis résumées dans le tableau final N° 13 avec leur écart quadratique.

Nous avons également pris le ^{140}Ba comme référence dont le rendement est tiré de la compilation de CROALL (22) qui rassemble 5 séries de valeurs.

NEUTRONS de Fission

		Sans séparation						Non destructif								
		TH2 N°1			TH2 N°2			TH2 N°3		TH2 N°4			TH2 N			
	refroidissement	19 h	2 j	11 j	1 j	9 j	14 j	5 j	18 j	1 j	2 j	3 j	19 h	1 j	36 h	
91 Sr	749.8															
	1024.3	7.87	7.49		[6.8]					7.23	7.36		7.47	7.01	6.65	
91 Y	555.6		7.40		6.92					6.99	6.63	6.07				
92 Sr	1383.9															
92 Y	934.5	6.87	[illegible]		6.78					5.51						
93 Y	947.0															
95 Zr	756.7										5.87	5.97			5.10	
97 Zr	743.2									4.52	4.35	4.30	4.49	4.30	4.08	
97 Nb	658.1	3.87														
99 Mo	739.7									2.93	2.67	2.52			3.01	
103 Ru	497.2			0.11			0.14	0.11	0.126							
112 Ag	616.8										0.12	0.11			0.11	
127 Sb	473.0											0.04				
131 I	364.4	1.94		1.74	1.76	1.57		1.72		1.73	1.79	1.76		1.68	1,60	
137 I	772.7	3.26			2.91	2.55	2.41			3.21	3.07	2.94			[illegible]	
132 Te	228.2		3.82	3.25			3.09	3.12		3.31	3.31	3.26	3.58	3.44	3.25	
133 I	529.9									4.54					4.33	
135 I	1260.5	5.00			5.20					5.09			5.18	4.90		
140 Ba	537.3	[7.4]	[7.4]	[7.4]	6.53	[7.4]	[7.4]	[7.4]	[7.4]	[7.4]	[7.4]	[7.4]	[7.4]	[7.4]	[7.4]	
143 Ce	293.3									5.93	5.78	5.57		5.38	5.27	
147 Nd	531.0			1.74		2.44	2,26		1.79							

□ valeur fixe comme référence

		TH2 N°6		TH2 N°7		TH2 N°8			TH2 N°9		MOYENNES	
	34 j	19 h	2 j	18 h	4 j 2 h	19 h	6 j	23 j	19 h	11 j	Ref ^{140}Ba	Ref ^{91}Sr
		[6.7]		[6.8]		[6.8]			[6.8]		7.30±0.06	
		7.06		6.90		6.86			6.82		6.94	
		5.96		5.94		5.61			5.68			5.99±0.42
						4.92						
			5.85		5.13						5.46±0.38	
		4.54	4.15	4.42	~~4.15~~	4.29					4.34±0.14	
		2.55	2.10	2.34	2.07	2.54					2.45±0.32	
1			0,095		0.119	0.11	0,19			0.119	0.11±0.01	
		0.07			0.10						0.10±0.01	
					0.07						0.055	
			1.77		1.68		1.69			1.72	1.72±0.05	
		2.55	2.	2.43	2.34	2.32				2.43	2.70±0.35	
		3.02	3.43		3.20		3.22			3.26	3.31±0.18	
		4.88	4.49	4.68	4.08	4.51					4.39± 0.17	
		5.10		4.91		4.99			4.98			5.05±0.10
	[7.4]	6.83	[7.4]	7.84	[7.4]	7.41	[7.4]	[7.4]	7.68	[7.4]	7.4*	7.54
				5.69		5.54			5.68		5.59	5.60±0.20
4	2.40				2.19		2.39			2.45	2.24±0.29	

	TH2 N°1		TH2 N°2			TH2 N°3			TH2 N°4			TH2 N°5*		TH2 N°7		Moyenn
	4J	14J	3h	21h	7J	2h½	20h	6J	2h	20h	4J	20h	7J	21h	4J	
749.8	7,03		7.22	6.40		7.05	6.69		6.79	6.21		6.43				
1024.3	6.88		6.82	6.31		6.60	6.40		6.66	6.69		6.27				6.50±0.
555 6	7,07			6.54						6.96						
934.5	6.82		6.80	6.02		6.60			6.41	6.27		5.99				6.60±0.16
1383.9						6.21				5.12		5.00				
947.5	5.50						5.52			5.14		5.58		5.89		5.53±0.
165.8			9.31			8.49										
5373	7.4	7.4		7.4	7.4		7.4	7.4		7.4	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4
145.4	7.38	7.26		7.61	7.50			6.79		7.31		7.27	6.88	7.48	7.06	7.25±0.
641.2			6.55			6.35			6.30	?						6.40±0
293.3	6.05	6.35	6.29	5.97		5.81	5.71	5.55	5.67	6.10	5.76	5.85		6.24	5.83	5.94±0
531.0	2.40	2,38			2.35		2.93	2.34		2.52	2.47	2.53	2.35	2.10	2.36	2.43±0
424.0																
334 9	0.365			0,320			0.335			0.326						0.322±0.

* Ces 2 moyennes sont faits par rapport au ^{91}Sr

Tableau 1 L

CADMIUM

	P₀	84.5% TH2N°1	50.28% TH2N°2	35.2% TH2N°3			35.1% TH2N°4	25.5% TH2N°8	69.6% TH2N°9	56.7% TH2N°10	MOYENNE
Refroidissement		5 j	4ᴴ 1/2	4ᴴ	11ᴴ	3 j	1ᴴ	1 j	21ᴴ		
115 = 527.3 KeV		0.044	0.048	0.046	0.04	0.054	0.055 0.052	0.076	0.073	0.065	0.055 ± 0.00
117 =	273.2 KeV		0.042	0.052			0.060				0.051 ± 0.00
	1234.5 KeV		0.0011	0.0009			0.0017				

RUTHENIUM

		TH2N°5 2ᴴ	TH2N°6 1ᴴ1/2	TH2N°8 3ᴴ1/2	TH2N°10 4ᴴ	MOYENNES
103 = 497.2 KeV		1.0	1.0	1.0	1.0	1.0 *
105	469.4	0.145	0.232	0.364	0.549	
	724.3	0.338	0.284	0.430	0.600	0.41 ± 0.12

* référence ^{103}Ru. Or en Non destructif $^{103}Ru = 0.12$ ⟶ $^{105}Ru = 0.049 \pm 0.005$

Tableau 12

• NEUTRONS de RÉACTEURS

	IYER « all 1963 (6)	WYTTENBACH VON GUNTEN 1965 (7)	•KENNET 1957 HARVEY (8) 1968 (9)	Notre Travail
As 77	0.011 ± 0.0006		0.014	
Br 83	1.92 ± 0.14		• 2.06	
Br 84			• 3.78	
Kr 85			• 4.01	
Kr 86			• 6.21	
Kr 87			6.57	
Kr 88			6.92	
Sr 90	7.41 ± 0.27	6.99		
Sr 91	6.80 ± 0.55		7.45	6.80 ± 0.30
Y 92				6.60 ± 0.16
Y 93				5.53 ± 0.24
Zr 95	5.15 ± 0,31			5.46 ± 0.38
Zr 97	4.22 ± 0.06		4.52	4.34 ± 0.14
Mo 99	2.78	2.78		2.45 ± 0.38
Ru 103	0.15 ± 0.07	0.15		0.11 ± 0.01
Ru 105				0.049 ± 0.01
Rh 105	0.030 ± 0.004			
Ru 106	0,040 ± 0.021	0,062		
Ag 111	0.067 ± 0.006	0.082		
Ag 112	0.065 ± 0.006	0.090		0.10 ± 0.01
Ag 113	0.059 ± 0.004			
Cd 115	0.057 ± 0.004			0.055 ± 0.01
Cd 117	0.053 ± 0.006			0.051 ± 0.007
Sb 127	0.091 ± 0.004			0.055
Sb 129				
I 131	1.73 ± 0.07	2.13	• 1.56	1.72 ±
I 132			• 2.76	2,70 ±
Te 132				
I 133			3.75	4.39 ± 0.14
I 134			• 5.18	

Tableau 13

I 135			4.66	5.05 ± 0.10
Cs 136			5.44	
Cs 137	4.46 ± 0.06	6.59	4.60	
Ba 139	6.64 ± 0.033		6.99	
Ba 140	8.50 ± 0.23	7.72		7.40 *
Ce 141	7.87 ± 0.36	7.26		7.25 ± 0.26
La 142				6.40 ± 0.11
Ce 143	7.32 ± 0.25		6.79	5.94 ± 0.23
Ce 144	7.93 ± 0.03	7.98		
Ce 145			5.52	
Ce 146			4.73	
Nd 147	3.82 ± 0.20			2.43 ± 0.19
Pm 148			2.08	
Nd 149	0.945			
Pm 150			1.04	
Pm 151				0.32 ± 0.004
Eu 156	0.0027 ± 0.0003			

* 7.4 référence prise chez CROALL AERER 5086

Les rendements que nous avons calculés sont en général en accord avec les autres portés sur le tableau 13. Les chaînes 92, 93, 142 et 151 n'ont jamais été mesurées par les auteurs cités sur ce tableau. Nous ne comparons pas nos valeurs.

Les rendements mesurés pour les chaînes 91, 95, 97, 99, 103, 131, 132 et 141 sont en accord avec les autres valeurs relevée sur le tableau.

Le rendement mesuré au niveau de ^{112}Ag est bien plus élevé que les autres données du tableau, tout en étant voisin de la vale de WYTTENBACH (7). Il reste cependant bien au-delà des rendements des masses 115 et 117 que nous trouvons du même ordre que IYER (6). Peut-être est-ce là trop faible statistique (2000 chocs) sur le pic gamma de 616.8 keV) qui nous fait évaluer avec optimisme son aire ; mais cela n'explique pas la multiplication par 2 de son rendement par rapport aux masses voisines.

Pour ^{127}Sb nous nous sommes également heurtés à un problème de statistique. Cependant, dans ce cas notre évaluation optimiste n'empêche pas de trouver une valeur nettement plus basse que celle de IYER. Les rendements cumulatifs que nous avons calculés au niveau ^{133}I et ^{135}I sont plus élevés que ceux déjà mesurés, mais ils s'intègrent bien dans la courbe de distribution en masses (fig. 28). Il en est de même pour les masses 143 et 147.

Les résultats de cette étude semblent indiquer que la fission du ^{232}Th par des neutrons de réacteurs est seulement assymétrique, la proportion de fission symétrique paraissant nulle. La précision de nos mesures ne permet pas cependant d'être pleinement affirmatif sur ce sujet.

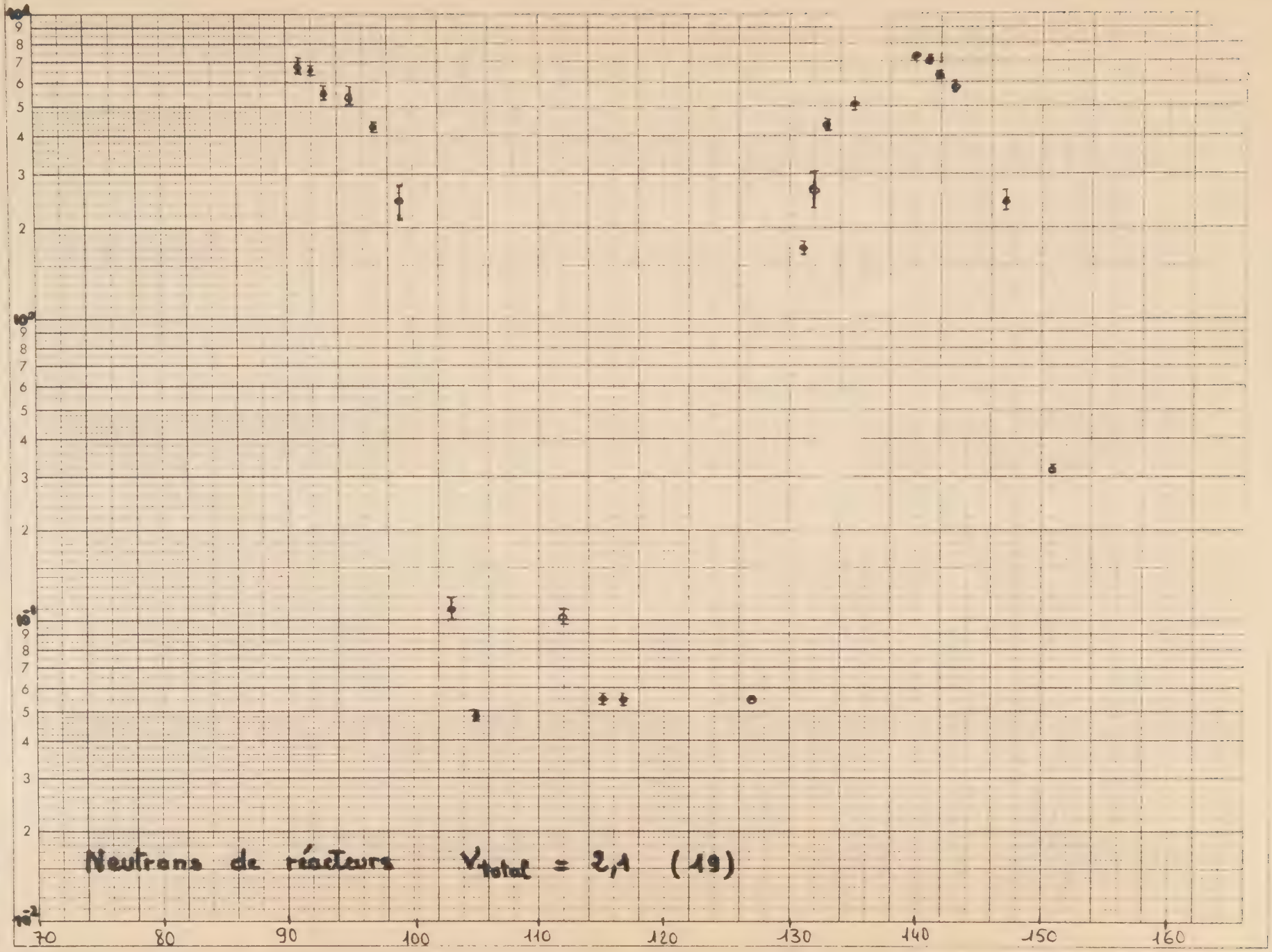

Neutrons de réacteurs ν_{total} = 2,1 (19)
70
80
90
100
110
120
130
140
150
160

Fig 28

CONCLUSION :

Les mesures que nous avons faites nous permettent de tirer les conclusions suivantes :

La courbe de distribution en masses dans la fission du ^{232}th par neutrons, est une combinaison de deux modes de fission : symétrique et asymétrique.

La probabilité de fission symétrique inexistante quand induite par des neutrons de réacteurs, devient très importante pour de neutrons de 14 MeV. Par exemple nous allons de 0,05% sur le ^{115}Cd dans le cas de la fission par neutrons de réacteurs, à 1,57% à 14 MeV.

Les 2 vallées deviennent moins profondes = 0,049% sur le ^{105}Ru devient 0,94% soit presque 20 fois plus grand.

De même la hauteur du pic des produits de fission lourds et du pic des produits de fission légers diminue quand l'énergie des neutrons atteint 14 MeV. Nous passons de 6,8% à 5,72% sur le ^{91}Sr et de 7,4% à 5,9% sur le ^{140}Ba.

Il serait intéressant de déterminer à partir de quelle énergie des neutrons incidents, la fission symétrique devient observable. En raison de sa dispersion en énergie un spectre de neutrons de réacteurs se prête mal à ce genre de mesures. Il faudrait des neutrons d'énergie discrète produits par réactions nucléaires.

Nous espérons que les mesures que nous avons faites ont contri à améliorer la précision sur les rendements de fission du ^{232}t Ces rendements seront utiles quand le ^{232}th sera utilisé comme combustible nucléaire.

FIGURES

1 Variation de la section efficace du ^{232}th en fonction de l'énergie des neutrons incidents

2 Courbe de Zp

3 Spectre de ^{232}th avant irradiation

4 Maquette Héloïse

5 Courbe de Kd Cd dans le cas de Hcl/Dowex 1x8

6 Courbe de Kd Sb dans le cas Hcl/HDEP

7 Différentes étapes dans le traitement de l'information

8 a,b,c,d Chaînes isobariques étudiées

9 Raie gamma du Ba^{140} (537.3 keV)

10 " " ^{95}Zr (756.7 keV)

11 " " 131I (364.4 keV)

12 " " 132Te (228.2 keV)

13 " " 143Ce (293.3 keV)

14 " " ^{103}Ru 127 Sb

15 " " ^{112}Ag à 14 MeV

16 " " ^{112}Ag Neutrons de fission

17 " " ^{151}Pm Neutrons de fission

18 " " ^{91}Sr (1024 keV), ^{135}I (1060.5 keV)

19 " " ^{97}Zr

20 " " 92Y

21 " " 142La (641.2 keV), 143Ce (293.3 keV)

22 " " 149Nd (424 keV)

23 " " Ruthenium

24 " " Cadmium 117

25 " " Cadmium 115

26 " " ^{128}, ^{127}Sn

27 Courbe de distribution de masses à 14 MeV

28 Courbe de distribution de masses aux neutrons de réacteur.

TABLEAUX

N° 1 . Irradiations à 14 MeV
2 . Irradiations aux neutrons de réacteurs
3 . Données nucléaires des éléments étudiés
4 . Tableau relatif pour calcul de rendement
5 . Résultats concernant la fraction Hcl 12 N à 14 MeV
6 . " " " non destructif à 14 M
7 . " " " Ruthenium, antimoines étains à 14 MeV
8 . " " " Cadmium à 14 MeV, kry
9 . Résultats finaux à 14 MeV
10 . Résultats concernant la fraction non destructif aux neutrons de réacteurs
11 . Résultats concernant la fraction Hcl 12 N aux neutrons de réacteurs
12 . Résultats concernant la fraction Cadmium et ruthenium aux neutrons de réact
13 . Résultats finaux aux neutrons de réacteurs.

REFERENCES

) R. GANAPATHY, P.K. KURODA	J. Inorg.Nucl.Chem. 28 (1966)
) M. THEIN, M.N. RAO, P.K. KURODA	J. Inorg.Nucl.Chem. 30 (1968)
) L.H. GEVAERT, R.E. JERVIS, H.D. SHARMA	Can.Journal of Chem 48 (1970)
) D.R. NETAWAY	Phys. Rev. 182 (1969) 1251
) D.L. SWINDLE, R.J. WRIGHT, T.E. WARD, P.K. KURODA	J. Inorg.Nucl.Chem. 33 (1971)
) R.H. IYER, C.K. NATHEWS, N. RAVINDRAN, K. RENGAN, D.V. SINGH, M.V. RAMANIAH, D.H. SHARMA	J. Inorg.Nucl.Chem. 25 (1963)
) A. WYTTENBACH, H.R. VON GUNTEN	Proc.Symp.Physics and Chem of fission vol. 1 IAEA Vienna (196
) T.I. KENNET and H.G. THODE	Can. Journal of Physics 35(1957
) J.W. HARVEY, W.B. CLARKE, D.J. GORMAN, R.H. TOMLINSON	Can Journal of Chem. 46 (1968)
)) M.E. MEEK, B.F. RIDER,	NEDO 12154 71NED41 class 1 (19
) H.R. VON GUNTEN	Actinides Review 1 (1969) 275
2) E.A.C. CROUCH	Symposium on applications of Nu Data in Science and Technology Paris 12-16 Mars 1973 IAEA/SM-1
) M. LAMMER, O.J. EDER	Symposium Paris 12-16 Mars 1973
) K.M. BROOM	Phys. Rev. 133 (1964) 4 B
) S.J. LYLE, G.R. MARTIN, J.E. WHITLEY	Radio chimi.Acta 3 (1964) 80
) J.P. BOCQUET, R. BRISSOT, J. CRANCON, A. MOUSSA	Nucl. Phys. A 189 (1972) 556
) L.C. CARRAZ	Journées spectrométrie gamma Grenoble Mai 73
) O. MARBACH, J. BLACHOT, L.C. CARRAZ, C. CHAUVIN, A. FERRIEU	Journées spectrométrie gamma Grenoble Mai 73
) F. MANERO, V.A. KONSHIN	Atomic energie review vol.10 N°4
) H.W. NEWSON	Phys. Rev. 122 (1961) 1224
J. KLEINBERG	Collected radioach. procedures La 1721
CROALL	AERER 5086.